

Struktur und Dynamik binärer komplexer Plasmen

DISSERTATION
ZUR ERLANGUNG DES DOKTORGRADES
DER MATHEMATISCH-NATURWISSENSCHAFTLICHEN FAKULTÄT
DER CHRISTIAN-ALBRECHTS-UNIVERSITÄT ZU KIEL

vorgelegt von:
Frank Wieben

Kiel, 2021

Erster Gutachter:

Prof. Dr. rer. nat. Dietmar Block

Zweiter Gutachter:

Prof. Dr. rer. nat. Holger Kersten

Tag der mündlichen Prüfung:

25.03.2021

Kurzfassung

Die vorliegende Dissertation befasst sich mit der Struktur und Dynamik binärer Mischungen in komplexen (staubigen) Plasmen. Diese beinhalten zusätzlich zu den Neutralgasatomen, Ionen und Elektronen noch mikrometergroße Glas- oder Polymerpartikel, die sich elektrisch aufladen und kristalline Strukturen bilden können. In der Natur treten staubige Plasmen in der Regel polydispers auf, während in Laborexperimenten zumeist monodisperse Partikelsysteme untersucht werden. Die Verwendung binärer Mischungen als einfachstes polydisperses System ist ein wichtiger erster Schritt auf dem Weg zu polydispersen komplexen Plasmen im Labor.

Da die Kräfte auf die Staubpartikel mit dem Partikelradius skalieren, ist mit der Zugabe einer zweiten Komponente eine Modifikation der Kräftebilanz zu erwarten. Das hat Konsequenzen für den Einschluss, die Struktur, die Manipulierbarkeit und die Verteilungsfunktionen dieser Systeme. Die Auswirkungen dieses veränderten Kräftegleichgewichts auf die Struktur ist eine Entmischung der Partikel. Allerdings ist ein durchmischter Zustand notwendig, um die Eigenschaften binärer Systeme untersuchen zu können. Obschon es Experimente zu entmischten und partiell durchmischten binären Systemen gab, stand die Realisierung vollständig durchmischter binärer Systeme noch aus. Das Ziel dieser Arbeit war die Untersuchung des Einflusses einer veränderten Kräftebilanz auf die Struktur und (Thermo-)Dynamik in durchmischten Systemen.

In dieser Arbeit wurde mithilfe einer Kombination aus Molekulardynamik-Simulationen und Experimenten die Grundlage für die Präparation nicht entmischter, binärer komplexer Plasmen erarbeitet. Zunächst konnte durch den Übergang von drei- zu zweidimensionalen Systemen die Kräftebilanz erheblich vereinfacht werden. Ein optimales Einstellen der einschließenden Kräfte wurde über die Ausnutzung plasmahärenter Ätzprozesse erreicht. Zuletzt führte eine Modifikation des horizontalen Einschlusses zu einer homogenen Durchmischung. Mit diesen Erkenntnissen konnte ein Präparationsschema für zweidimensionale binäre Mischungen aufgestellt werden.

Zur dynamischen Anregung der Partikelsysteme in komplexen Plasmen haben sich Laser als minimalinvasives Manipulationswerkzeug bewährt. In binären Mischungen ist ein Unterschied in der Kraftwirkung auf die beiden Partikelsorten zu erwarten, was eine detaillierte Untersuchung der Beiträge von Strahlungsdruck und Photophorese in komplexen Plasmen motivierte. Aus den Temperaturen in einem Laserheizszenario konnten in dieser Arbeit erstmals quantitativ die Beiträge dieser Kraftkomponenten in binären Mischungen bestimmt werden. Die Ergebnisse zeigen, dass für die im Feld der komplexen Plasmen weit verbreiteten Melaminharzpartikel die photophoretische Kraft von gleicher Größenordnung wie andere Kräfte sein kann.

Die Erkenntnisse über die exakte Kraftwirkung der Laserstrahlung erlauben die Umsetzung eines ersten Experiments zur Thermodynamik binärer Mischungen. Durch Lasermanipulation ließ sich ein binäres System mit unterschiedlichen Temperaturen im selben Volumen erzeugen und aufrecht erhalten. Dieser außerordentliche Zustand eignet sich hervorragend für fundamentale Experimente zur Temperaturangleichung und Mischung zweier Teilsysteme. Der Zugang zum vollständigen Phasenraum ermöglichte eine Bestimmung der Entropieänderung und abgeleiteter Größen. Die ermittelte Wärmekapazität folgt dem DULONG-PETIT-Gesetz, wie es für derartige Systeme zu erwarten ist.

Abstract

This thesis investigates the structure and dynamics of binary mixtures in complex (dusty) plasmas. Besides neutral atoms, ions and electrons, these systems contain micron-sized glass or polymer particles which attain high negative charges. The particles can be levitated in the plasma and form crystals under certain conditions. In nature, dusty plasmas occur polydisperse, while laboratory experiments mainly use monodisperse particle samples. A first important step en route to polydisperse complex plasmas in the laboratory are binary mixtures, containing two distinct particle species of different sizes.

Since most forces scale with particle size, the addition of a second dust component with different size will modify the total force balance. Consequently, this will impact confinement, structure, manipulation and distribution functions of these systems. The main structural consequence of the altered force balance is the occurrence of phase separation. However, to study phenomena of binary systems, a mixed state is necessary. While there were experiments on demixed and partially mixed binary systems, the realization of a fully mixed systems were to be owed. The goal of this work was to study the impact of the altered force balance on structure and (thermo-)dynamics in mixed systems.

In this work a combination of molecular dynamics simulations and experiments was used to reveal the basic physics that allow for the preparation of mixed binary systems. A first simplification was achieved by transitioning from three- to two-dimensional systems. Confinement forces were adjusted utilizing the plasma inherent etching processes. Finally, a modification of the horizontal confinement allowed to further optimize the structure. This information was used to propose a preparation scheme for two-dimensional binary mixtures.

Lasers are a well established minimally invasive tool for the excitation of dynamic phenomena in complex plasmas. In binary mixtures the forces will deviate due to different particle types being used. This motivated an investigation of the contributions of radiation pressure and photophoresis to the total laser force. For the first time, the force components were determined from the kinetic temperatures in a laser heating scenario in complex plasmas using a binary mixture. The results reveal a non-negligible photophoretic force for melamine resin particles which are widely used in complex plasma research.

The insight into the laser particle interaction made first experiments on the thermodynamics of binary mixtures feasible. By using laser manipulation, a binary system featuring two particle species with different temperatures could be produced and maintained in the same volume. This extraordinary state is ideally suited for experiments on the equilibration and mixing of two subsystems. Full access to the phase space information allowed for the determination of changes in entropy and derived quantities. The obtained heat capacity follows the DULONG-PETIT law as is expected for these type of systems.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Grundlagen komplexer Plasmen	5
2.1	Das Plasma	5
2.2	Stark gekoppelte Systeme	8
2.3	Aufladung von Mikropartikeln im Plasma	10
2.4	Auf die Partikel wirkende Kräfte	13
2.5	Einschluss in der Plasmarandschicht	16
2.6	Wechselwirkung mit Laserlicht	19
2.6.1	Strahlungsdruck	20
2.6.2	Photophorese	23
3	Experimentelle und numerische Methoden	33
3.1	Die Plasmakammer	33
3.2	Bildgebung, Partikelverfolgung und -unterscheidung	36
3.3	Die phasenaufgelöste Resonanzmethode	39
3.4	Die Laserheizung als Wärmebad	42
3.5	BADCOP-MD: Eine Langevin-Molekulardynamik Simulation	44
3.6	Die Konfigurationstemperatur als Ladungsdiagnostik	50
4	Struktur binärer komplexer Plasmen	57
4.1	Reale binäre Systeme in der Plasmarandschicht	58
4.2	Vertikale Kräftebilanz	60
4.3	Mischung und Entmischung finiter Systeme	61
4.4	Die Konfiguration als Maß für die relative Ladung	69
4.5	Präparation zweidimensionaler binärer Mischungen	73
5	Lasermanipulation binärer Mischungen	75
5.1	Methoden der Laserkraftmessung	76
5.2	Modell der kinetischen Temperatur	77
5.3	Strahlungsdruck und photophoretische Kraft	79
5.4	Diskussion der Ergebnisse	83
6	Thermodynamik binärer komplexer Plasmen	89
6.1	Entropieänderung nach Clausius	90
6.1.1	Thermodynamische Ensembles, Entropie und Wärmekapazität	91
6.1.2	Bestimmung des Phasenraumvolumens	94
6.1.3	Monodisperse Systeme	97

6.1.4	Binäre Mischungen	98
6.2	Verteilungsfunktionen komplexer Plasmen	101
6.2.1	Ein Maß für die Gewichtung der Ränder einer Stichprobe	104
6.2.2	Endlastigkeit der Geschwindigkeitsverteilungen	105
6.3	Fazit	107
7	Zusammenfassung	111
	Literaturverzeichnis	115
	Publikationsliste	135
	Symbolverzeichnis	137
	Danksagung	143
	Eidesstattliche Erklärung	145

1 | Einleitung

Dass sich die Eigenschaften eines Stoffes durch die Zugabe einer weiteren Komponente grundlegend verändern können, lässt sich nicht nur in den Naturwissenschaften, sondern auch im Alltag beobachten. Die mikroskopische Ursache für die veränderten Eigenschaften ist allerdings nicht direkt sichtbar, sodass sich die Verwendung von Modellsystemen anbietet, um theoretische Vorhersagen dieser Systeme zu überprüfen. Das einfachste Modell für ein Mehrkomponentensystem ist eine binäre Mischung, bestehend aus zwei Teilchensorten.

Im Falle elektrostatisch wechselwirkender Partikel sind stark gekoppelte Modellsysteme von hoher Relevanz [1]. In diesen Systemen übersteigt die Wechselwirkungsenergie der Partikel untereinander deren mittlere thermische Energie. Eine Folge der starken Kopplung ist unter anderem die Kristallisation [2, 3] oder die starke Ausprägung einer kollektiven Dynamik [4]. Zu typischen stark gekoppelten Systemen gehören unter anderem kolloidale Suspensionen [5, 6], Ionenkristalle [7–9] und komplexe Plasmen [10–12]. Allein diese Beispiele unterscheiden sich stark in der Zugänglichkeit zu physikalischen Phänomenen. So erfordern Ionenkristalle eine aufwendige Kühlung, um die starke Kopplung zu erreichen. In kolloidalen Suspensionen sind binäre Mischungen seit den 1980er Jahren Gegenstand der Forschung [13–15]. Die Systeme werden jedoch in Flüssigkeiten präpariert und erlauben auf Grund der Dämpfung nur einen eingeschränkten Zugang zur Dynamik.

Komplexe (staubige) Plasmen hingegen unterliegen diesen Einschränkungen nicht [16–18] und sind daher ein nahezu ideales Modellsystem für stark gekoppelte Systeme. Komplexe Plasmen bestehen aus Festkörperpartikeln von einigen hundert Nanometern bis einigen Mikrometern Größe, die sich in einer Plasmaumgebung aus Elektronen, Ionen und Neutralgasatomen aufhalten. Im Plasma bilden die Staubpartikel unter geeigneten Bedingungen Systeme verschiedenster Geometrien mit Abmessungen von einigen Millimetern bis Zentimetern, die direkt mit Kameras beobachtet werden können. Die Staubpartikel sind in Niederdruckplasmen bei Raumtemperatur bereits stark gekoppelt und sowohl strukturelle [19–21] als auch dynamische Untersuchungen [22] sind bei diesen Bedingungen möglich. Die Partikel werden entweder mit vorgegebener Größenverteilung in das Plasma eingebracht oder direkt im Reaktor durch die Beimischung reaktiver Gase erzeugt [23]. Letzterer Prozess erzeugt dichte Nanostaubwolken mit Partikelradien im Submikrometerbereich, die interessante dynamische Phänomene wie selbsterregte Wellen [24] aufweisen, jedoch eine aufwendige komplementäre Größendiagnostik des Staubs [25, 26] erfordern.

Vermutlich wurde das erste Plasma mit zusätzlichen makroskopischen Partikeln von LANGMUIR noch vor 1924 erzeugt [27]. Bei seinen Untersuchungen zur Bogenentladungen stellte er fest, dass Wolfram aus dem Elektrodenmaterial herausgelöst wurde und kleine Wolframtröpfchen in die Umgebung der Entladung emporstiegen [27, 28]. Die Tröpfchen trugen offensichtlich eine elektrische Ladung, da sie auf einen nähergebrachten Permanentmagneten reagierten und das Verhalten des Lichtbogens grundlegend veränderten. Auf theoretischer Ebene leisteten bereits DEBYE und HÜCKEL in ihrer Arbeit zu Ionen in Elektrolytlösungen einen Beitrag zur Theorie der elektrostatischen Wechselwirkung in Medien mit freien Ladungsträgern [29]. Große Aufmerksamkeit erregten Anfang der 1980er Jahre die Aufnahmen der Saturnringe, die von der VOYAGER 2 Sonde zur Erde geschickt wurden [30]. In den Ringen waren zusätzliche Strukturen zu erkennen, die auf Grund ihrer Ähnlichkeit mit Speichen als „spokes“ bezeichnet wurden. Aus dem Verhältnis der Lichtstreuintensitäten in Vor- und Rückwärtsrichtung konnte darauf geschlossen werden, dass bestimmte strukturelle Phänomene in den Ringen durch kleine Staubpartikel mit Abmessungen im Mikrometerbereich verursacht wurden [31]. Den Weg zum Modellsysteme ebnete 1986 IKEZI mit seiner Vorhersage, dass Partikel mit einem Radius von mehreren Mikrometern ausreichend Ladung aufsammeln würden, um im Plasma stark gekoppelte Systeme und sogar sogenannte COULOMB-Kristalle bilden zu können [32]. Die Möglichkeit der Erzeugung eines solchen Systems im Labor wurde 1989 durch die Experimente von SELWYN bestärkt [33]. Bei der Prozessoptimierung einer plasmabasierten Modifikation von Silizium-Wafern entdeckte er Staubpartikel, die sich während des Prozesses im Plasma gebildet hatten. 1994 gelang es simultan drei unabhängigen Gruppen weltweit, Staubpartikel gezielt in einer Plasmaentladung einzufangen und die Staubsysteme zu charakterisieren [16–18]. Erste Untersuchungen zeigten, dass diese Mikropartikel tatsächlich kristalline Strukturen ausbilden. Somit waren die ersten Nachweise erbracht, dass es sich bei diesen „Plasmakristallen“ um stark gekoppelte Systeme handelt.

Monodisperse komplexe Plasmen bestehen aus einer einzelnen Staubspezies mit schmaler Größenverteilung und sind ausführlich untersucht. Ein Vorteil komplexer Plasmen ist die Realisierbarkeit unterschiedlichster Geometrien. So wurden eindimensionale [34, 35], zwei- und dreidimensionale [36] sowie sphärische Kristalle [37, 21] in typischen Laborexperimenten erzeugt und beobachtet. Neuere Experimente auf der ISS ermöglichen exotische elektromagnetische Systeme, die durch Anlegen eines elektrischen Feld die Struktur verändern können [38]. Ebenso hat sich in zahlreichen Experimenten die One-Component Plasma [39] Analogie komplexer Plasmen bestätigt. So lassen sich aufgrund der geringen Dämpfung dynamische Phänomene wie Wellen [40–42], Normalmoden [43–45] oder durch propagierende Störungen verursachte Machkegel [46–48] beobachten und modellieren. Ausgedehnte Systeme im flüssigen Zustand erlauben die Untersuchung von Diffusionsprozessen [49–52], Scherströmungen [53–55] sowie der Kristallisation auf kinetischer Ebene [56]. Zweidimensionale komplexe Plasmen bieten Zugang zum vollständigen Phasenraum und sind daher ideale Modellsysteme für grundlegende thermodynamische Phänomene wie Phasenübergänge [57–61], Wärmeleitung [62–65] und Fluktuationstheoreme [66].

Der Einschluss und die Dynamik komplexer Plasmen wird durch die vorherrschenden Kräfte bestimmt. Modellierungen [67–69] und Experimente [70–72] zeigen bei einer Vielzahl der Kräfte eine Abhängigkeit von der Partikelgröße. In einem Multikomponentensystem bestehend aus Spezies unterschiedlicher Größe muss sich die gesamte Kräftebilanz des Systems verändern. Das kann Konsequenzen für den Einschluss der Partikel in der Randschicht, die Struktur, die Manipulation mit externen Kräften sowie für die Verteilungsfunktionen in dem System haben. Ein wichtiger erster Schritt auf dem Weg zu Multikomponentensystemen sind Systeme aus zwei Partikelsorten, sogenannte binäre Mischungen. Die Komponenten können sich dabei lediglich in der Größe, aber auch in anderen Eigenschaften unterscheiden.

Bereits erste Experimente binärer komplexer Plasmen unter Schwerelosigkeitsbedingungen zeigten die Konsequenzen der modifizierten Kräftebilanz auf [73, 74]. In diesen dreidimensionalen Systemen sorgen die vorherrschenden Einschlussbedingungen für eine Entmischung der Komponenten [75, 76]. Diese Dynamik ermöglicht die Untersuchung spezieller Phänomene strömender Vielteilchensysteme, wie die Spurbildung [77]. Im entmischten Zustand bildet sich eine Phasengrenze zwischen Bereichen unterschiedlicher Dichte aus, die interessante Experimente zur Wellenausbreitung über die Grenzfläche hinweg erlaubt [78, 79]. Eine ideales binäres Modellsystem gewährt allerdings zusätzlich einen Zugang zu einer vollständig durchmischten Phase. Zudem ist eine wohldefinierte Geometrie des Systems notwendig, um den Einschluss der Partikel einfach modellieren zu können.

Simulationen finiter stark gekoppelter Kristalle sagten voraus, dass der Übergang zu vollständig durchmischten Systemen in einer zweidimensionalen Konfiguration möglich sein sollte [80, 81]. In einer vorangegangenen Masterarbeit konnte in Experimenten gezeigt werden, dass die Kombination von Partikeln unterschiedlicher Materialien sowie die Ausnutzung plasmahärenter Ätzprozesse [82] die Präparation zweidimensionaler binärer Mischungen erlaubt [83]. Ein wichtiger Zwischenschritt sind Experimente an quasi-zweidimensionalen binären Mischungen. Diese zeichnen sich durch zwei separierte Lagen geringen Abstands aus, so dass die Wechselwirkung in der Ebene überwiegt und vornehmlich ein zweidimensionaler Charakter vorliegt. Quasi-zweidimensionale Systeme können z. B. über binäre Agglomerate von Partikeln der selben Sorte [84, 85] oder verschiedene Partikelpezies mit leicht unterschiedlichen Einschlussbedingungen in der Randschicht realisiert werden. Hier sind erste Experimente zur Dynamik von glasartigen Zuständen [86] und zur Wellenausbreitung in hochperiodischen binären Kristallgittern [87] hervorzuheben.

Das Ziel dieser Arbeit ist die Charakterisierung des Übergangs von monodispersen zu binären und insbesondere von zweilagigen zu zweidimensionalen komplexen Plasmen. Ein besonderer Fokus liegt auf den Auswirkungen der modifizierten Kräftebilanz auf die Struktur, die Wechselwirkung mit Laserlicht und der Thermodynamik. So zeigt diese Dissertation anhand von Simulationen und Experimenten, wie homogen durchmischte binäre Systeme in zweidimensionalen komplexen Plasmen präpariert werden können. Die Manipulation binärer Systeme mit Laserlicht wird durch die exakte Kraftwirkung eines Laserstrahls auf die Mikropartikel bestimmt. Die Verwendung binärer Systeme erlaubt insbesondere die Vermessung der einzelnen Komponenten der Lichtkraft auf die Partikel. Die in dieser Arbeit vorgestellten Experimente zeigen erstmals, dass die meist vernachlässigte photophoretische Kraft für typischerweise

verwendete Melaminharzpartikel von gleicher Größenordnung wie andere Kräfte sein kann. Als einfachstes polydisperses System können binäre Mischungen verwendet werden, um die thermodynamischen Eigenschaften beim Übergang von Ein- zu Zweikomponentensystemen direkt zu untersuchen. Eine Messung der Entropieänderung zeigt, dass sich binäre Mischungen wie die Summe aus zwei Teilsystemen verhalten und die zugrunde liegende Verteilungsfunktion erhalten bleibt.

Die Experimente und Simulationen dieser Arbeit wurden in der Kieler Arbeitsgruppe „Plasmadynamik“ begonnen. Im Sonderforschungsbereich SFB TR24 „Fundamentals of Complex Plasmas“ wurden die Arbeiten innerhalb des Projekts A3b „Order phenomena in dusty plasmas“ mitfinanziert [88, 89]. Die Anstrengungen binäre komplexe Plasmen zu erzeugen und zu charakterisieren wurden im Folgeprojekt BL555/3-1 vertieft und in der Arbeitsgruppe „Experimentelle Plasmaphysik“ beendet. Alle Experimente wurden am Lasermanipulationsexperiment „LaMa“ durchgeführt. Die zur Verfügung stehende Laserheizung erlaubt in ihrer Funktion als Wärmebad für die Staubpartikel nicht nur die Untersuchung der Kraftwirkung auf die Partikel selbst, sondern ebenfalls die gezielte Einstellung thermodynamischer Zustände. Für komplementäre Computereperimente kam ein eigens entwickelter LANGEVIN-Molekulardynamik Code namens BADCOP-MD zum Einsatz.

Die vorliegende Arbeit gliedert sich wie folgt: In Kapitel 2 werden die wichtigsten Grundlagen komplexer Plasmen behandelt. Ein besonderer Fokus liegt hier auf der Wechselwirkung von Licht mit den Partikeln. Die experimentellen und numerischen Methoden werden in Kapitel 3 vorgestellt. Neben dem Experiment mit vielseitigen Lasermanipulationsmöglichkeiten wird die LANGEVIN-Molekulardynamik Simulation für binäre Systeme beschrieben. Kapitel 4 befasst sich mit der Struktur binärer Mischungen und zeigt mithilfe von Simulationen, wie der Übergang zu zweidimensionalen binären komplexen Plasmen ablaufen kann. Die Vermessung der Licht-Partikel Wechselwirkung und insbesondere die auftretenden Lichtkräfte sind Gegenstand von Kapitel 5. Das Verständnis der Licht-Partikel Wechselwirkung erlaubt die Erzeugung eines Zustandes, der grundlegende Experimente zur Entropieänderung komplexer Plasmen ermöglicht. Diese werden in Kapitel 6 sowohl für monodisperse, als auch für binäre Systeme vorgestellt. Zusätzlich wird ein Bezug zu einem bekannten Gedankenexperiment zur Temperaturangleichung zweier Körper hergestellt. Schließlich wird die Arbeit in Kapitel 7 anhand ihrer Kernaussagen zusammengefasst.

2 | Grundlagen komplexer Plasmen

Komplexe (staubige) Plasmen¹ bestehen aus kleinen Festkörper- oder Aerosolpartikeln, die sich in einem ionisierten Gas, dem Plasma, befinden. Die mikrometergroßen Partikel können sich stark elektrisch aufladen und kristalline Strukturen bilden, die unter geeigneten Bedingungen mit gewöhnlichen Kameras beobachtet werden können. Auf Grund der hohen Ladung der Partikel sind komplexe Plasmen ein ideales Modellsystem für stark gekoppelte Systeme [11], deren Wechselwirkungsenergie die thermische Energie übersteigt. In diesem Kapitel wird in die Grundlagen komplexer Plasmen eingeführt.

Die Eigenschaften des als Hintergrundmedium und Ladungsträgerreservoir fungierenden Plasmas werden in Abschnitt 2.1 behandelt. Im darauffolgenden Abschnitt 2.2 werden komplexe Plasmen in das Feld der stark gekoppelten Systeme eingeordnet und ein Vergleich zu ähnlichen Systemen hergestellt. Die Aufladung von Mikropartikeln in einem Plasma ist entscheidend für die Wechselwirkung und Levitation und daher Gegenstand von Abschnitt 2.3. Die Partikel sind im Plasma diversen Kräften ausgesetzt, die in Abschnitt 2.4 eingeführt werden. Der für die Experimente entscheidende Einfang der Partikel wird in Abschnitt 2.5 vorgestellt. Abschließend wird in diesem Kapitel die Wechselwirkung von Licht mit den Mikropartikeln, insbesondere die Kraftwirkung, in Abschnitt 2.6 beschrieben.

2.1 Das Plasma

Da für komplexe Plasmen das Plasma hauptsächlich die Einschlussbedingungen und die Ladungsträger bereitstellt und das nicht ionisierte Gas die Dämpfung der Partikelbewegung verursacht, werden an dieser Stelle nur ausgewählte Themen der theoretischen Grundlagen aufgeführt. Für eine vertiefende Lektüre wird auf die Standardliteratur verwiesen, die ebenfalls für die Erstellung dieses Abschnitts verwendet wurde [90–92].

Ein Plasma ist ein teilweise oder vollständig ionisiertes Gas und beinhaltet im einfachsten Fall neben den Neutralgasatomen negative Elektronen und positive Ionen. Damit ist das Plasma selbst zum einen leitfähig, zum anderen lassen sich die geladenen Spezies mit elektrischen und magnetischen Feldern beeinflussen. Trotz freier elektrischer Ladungsträger ist das Plasma insgesamt elektrisch neutral. Das wird als „Quasineutralität“ des Plasmas bezeichnet. Die Ursache dieser Eigenschaft ist die effektive Abschirmung von Störladungen

¹Die Begriffe „staubiges Plasma“ (*engl.* „dusty plasma“) und „komplexes Plasma“ (*engl.* „complex plasma“) werden oft synonym verwendet. In dieser Arbeit kommt vornehmlich der Begriff „komplexes Plasma“ zum Einsatz.

durch die freien Ladungsträger im Plasma. Bringt man eine Testladung in ein Plasma ein, so werden Ladungen mit gleichem Vorzeichen abgestoßen und Ladungen mit unterschiedlichem Vorzeichen angezogen. Um die Testladung bildet sich im zeitlichen Mittel eine Schicht aus entgegengesetzt geladenen Teilchen. Das durch die Testladung verursachte elektrische Feld wird abgeschwächt und die Ladung effektiv abgeschirmt. Die charakteristische Längenskala dieser abschirmenden Wirkung ist die DEBYE-Länge λ_D , die für die verschiedenen Spezies durch

$$\lambda_{D,\alpha} = \sqrt{\frac{\epsilon_0 k_B T_\alpha}{n_\alpha e_0^2}} \quad (2.1)$$

gegeben ist, wobei ϵ_0 die Dielektrizitätskonstante, k_B die BOLTZMANN-Konstante und e_0 die Elementarladung sind. T_α und n_α sind die Temperatur und Teilchendichte der Spezies² α . Ein Großteil der Plasmen auf der Erde sind Nichtgleichgewichtplasmen, bei denen $T_e \neq T_i$ ist. Im quasineutralen Plasma mit $n_i = n_e$ weisen dann Elektronen und Ionen unterschiedliche DEBYE-Längen auf. Eine effektive Längenskala lässt sich über

$$\lambda_D^{-2} = \lambda_{D,e}^{-2} + \lambda_{D,i}^{-2} \quad (2.2)$$

angeben. Analog zur Parallelschaltung von Widerständen dominiert die kleinere beitragenden Komponente die effektive DEBYE-Länge. Da in den in dieser Arbeit verwendeten Entladungen stets $T_e \gg T_i$ angenommen werden kann, leisten die Ionen den größeren Beitrag zu λ_D .

Das elektrische Potential einer Testladung Q im Abstand r ist in einem Plasma durch das DEBYE-HÜCKEL- oder YUKAWA-Potential³

$$\Phi(r) = \frac{Q}{4\pi\epsilon_0} \frac{\exp\left(-\frac{r}{\lambda_D}\right)}{r} \quad (2.3)$$

gegeben. Die Abschirmung führt zu einer um den Exponentialfaktor $\exp(-r/\lambda_D)$ stärkeren Abnahme des Potentials mit dem Abstand r von der Testladung. Der Verlauf des abgeschirmten und nicht abgeschirmten Potentials $\Phi(r)/Q$ ist in Abbildung (Abb.) 2.1 dargestellt. Im Abstand einer DEBYE-Länge ist das Potential auf das $1/e$ -fache des COULOMB-Potentials abgefallen, wobei e die EULERSche Zahl ist.

Die Plasmaspezies reagieren nicht instantan auf eine eingebrachte Störung. Ein Maß für die Zeitskala auf der die Ladungsträger reagieren und die Quasineutralität wieder herstellen ist die Plasmafrequenz

$$\omega_{p,\alpha} = \sqrt{\frac{n_\alpha e_0^2}{\epsilon_0 m_\alpha}}. \quad (2.4)$$

²In dieser Arbeit stehen die Indizes „e“, „d“, „i“ und „n“ stets für die Elektronen (electrons), den Staub (dust), die Ionen (ions) und die Neutralgastome (neutrals).

³Die Benennung nach PETER DEBYE und ERICH HÜCKEL geht auf ihre grundlegenden Experimente an Ionen in Elektrolytlösungen zurück [29]. HIDEKI YUKAWA hingegen zeigte in den 1930er Jahren, dass ein abgeschirmtes COULOMB-Potential zwischen Protonen und Neutronen durch den Austausch von Pionen erzeugt wird [93]. Die Bezeichnungen werden im Feld der komplexen Plasmen synonym verwendet, obwohl die Benennung nach DEBYE und HÜCKEL durch die engere Beziehung der physikalischen Systeme naheliegender wäre. In der Literatur ist die Bezeichnung nach YUKAWA jedoch sehr stark vertreten und wird daher auch in dieser Arbeit verwendet.

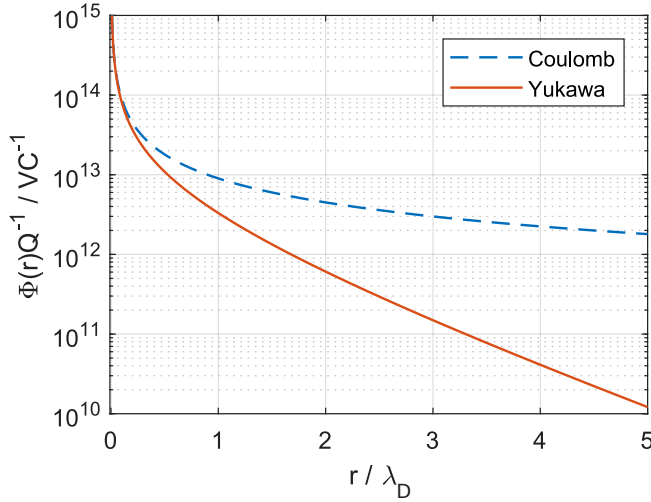


Abbildung 2.1: Vergleich des COULOMB- und YUKAWA-Potentials. Dargestellt ist Gl. (2.3) normiert mit der Ladung Q als Funktion des mit der Abschirmlänge normierten Abstands. Gezeigt sind die beiden Fälle $\lambda_D \rightarrow \infty$ (COULOMB) und $\lambda_D \in \mathbb{R}_+$ (YUKAWA). Gegenüber dem COULOMB-Potential fällt das abgeschirmte Potential um mehrere Größenordnungen ab.

Da für die Massen der Elektronen und Ionen $m_i \gg m_e$ gilt, können die Elektronen im Gegensatz zu den Ionen wesentlich schneller auf eine Störung reagieren.

Damit ein ionisiertes Gas die charakteristischen Eigenschaften eines Plasma, wie die Abschirmung von Ladungen, ein kollektives Verhalten und eine vorherrschende elektrostatische Wechselwirkung aufzeigt, muss es sich bezüglich der Dichte und Energie der Plasmaspezies in einem bestimmten Regime befinden. Zur Einordnung können die folgenden vereinfachten Bedingungen herangezogen werden: Die Abmessungen des in Frage kommenden ionisierten Gasvolumens müssen wesentlich größer als die charakteristische Längenskala, die DEBYE-Abschirmlänge sein, damit eine nennenswerte Abschirmung stattfinden kann und die Quasineutralität erhalten ist. Des Weiteren muss die Anzahl der Teilchen in der DEBYE-Kugel, einer Kugel mit der Abschirmlänge als Radius, weit größer als Eins sein, um ein kollektives Verhalten zu gewährleisten. Letztlich muss das Verhältnis aus Plasmafrequenz und Stoßfrequenz mit Neutralgasatomen sehr viel größer als Eins sein, um sicherzustellen, dass die elektrostatische Wechselwirkung der Ladungsträger überwiegt.

Eine besondere Eigenschaft eines Plasmas ist das Ausbilden einer Randschicht gegenüber Oberflächen, die an das Plasma angrenzen. Die Elektronen, Ionen und Neutralgasatome im Plasma führen thermische Bewegungen aus. Auf Grund ihrer höheren mittleren Geschwindigkeit erreichen die Elektronen jede neu eingeführte Oberfläche zuerst. Auf dieser stellt sich gegenüber dem Plasma ein negatives Potential ein, das zunehmend weitere Elektronen abstößt, während positive Ionen ein attraktives Potential wahrnehmen. Es bildet sich eine elektronenverarmte Raumladungsschicht in der Nähe der Oberfläche aus. Die Plasmarandschicht nimmt Abmessungen in der Größenordnung weniger DEBYE-Längen an. Da die Ladungsdichten der Elektronen und Ionen verschieden sind, ist die Schicht nicht mehr quasineutral. Dieser Bereich zeichnet sich zudem durch eine stark verringerte Lichtemission aus. Zwischen der Randschicht und dem ungestörten Plasma befindet sich ein Übergangsbereich, der als Vorsicht bezeichnet wird. Die Vorsicht ist zwar quasineutral, jedoch sind die Dichten gegenüber dem Plasmavolumen verringert. In der Randschicht liegt ein starkes elektrisches Feld vor, dass für die Levitation von Mikropartikeln entscheidend ist. Dieser Aspekt wird in Abschnitt 2.5 weiter vertieft.

Aufgrund der im Plasma vorliegenden elektrischen Felder strömen Ionen in die Randschicht. Diese Ionenströmung beeinflusst die effektive DEBYE-Länge, da deren Geschwindigkeitsverteilung hier nicht mehr isotrop ist. Befindet sich eine Testladung mit endlicher Ausdehnung λ_0 in einer Ionenströmung mit Driftgeschwindigkeit $v_{\text{drift},i}$, so kann die effektive Abschirmlänge⁴ λ_s mit der Interpolationsformel von HUTCHINSON [94]

$$\lambda_s^2 - \lambda_0^2 = \frac{\lambda_{D,e}^2}{1 + \frac{k_B T_e}{k_B T_i + \frac{1}{2} m_i v_{\text{drift},i}^2}} \quad (2.5)$$

berechnet werden. Die Größe λ_0 berücksichtigt die endliche Ausdehnung einer Testladung und ist in der Regel klein gegen die effektive Abschirmlänge. Für endliche Driftgeschwindigkeiten der Ionen $v_{\text{drift},i}$ ist die effektive Abschirmstärke größer als in einer isotropen Plasmaumgebung. Da die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimente stets Partikel in der Randschicht des Plasmas betrachten, wird im Rest der Arbeit die Größe λ_s verwendet.

Um ein Plasma zu erzeugen, muss eine Dissoziation der Gasatome durch das Zuführen von Energie erreicht werden. In industriellen und wissenschaftlichen Anwendungen finden überwiegend elektrische Gleich- (DC) oder Hochfrequenzentladungen (HF) Verwendung. Freie Elektronen im Gas zwischen den Elektroden werden im elektrischen Feld beschleunigt und können durch Stoßionisation weitere Ladungsträger erzeugen. HF-Entladungen (*engl.* radio frequency (rf) discharge) mit einer Frequenz von $f_{\text{rf}} = 13,56 \text{ MHz}$ werden oft für Niedertemperaturplasmen eingesetzt. Mit ihrer geringen Masse können die Elektronen dem Wechselfeld folgen, während die trägen Ionen ein zeitlich gemitteltes Feld wahrnehmen. Typische Experimente im Feld der staubigen Plasmen werden mit HF-Entladungen in Argon mit $f_{\text{rf}} = 13,56 \text{ MHz}$ und $p < 100 \text{ Pa}$ durchgeführt.

2.2 Stark gekoppelte Systeme

Ein System wird als „stark gekoppelt“ bezeichnet, wenn die potentielle Energie U die kinetische Energie K übersteigt. Dies lässt sich mit dem Parameter $\Gamma = U/K$ quantifizieren. Die Verwendung eines derartigen Parameters geht auf BRUSH, SAHLIN und TELLER [1] zurück, die ihre Ergebnisse zu One-Component Plasmas (OCP) in Form des dimensionslosen Parameters

$$\Gamma = \frac{(Ze_0)^2}{4\pi\epsilon_0 b_{\text{WS}} k_B T} \quad (2.6)$$

angaben. Die kinetische Energie wurde hier mit der thermischen Energie $k_B T$ gleichgesetzt. Z ist die Ladungszahl der betrachteten Partikel und $b_{\text{WS}} \propto n^{-\frac{1}{d}}$ ist der WIGNER-SEITZ-Radius, der den mit der Dichte n eines d -dimensionalen Systems verknüpften mittleren Interpartikelabstand bezeichnet. Für OCPs lässt sich ein kritisches Γ_{crit} angeben, bei dem der Fest-Flüssig-Phasenübergang stattfindet [95]. In späteren Arbeiten wurde der Ausdruck aus Gleichung (Gl.) (2.6) als Kopplungsparameter (*engl.* coupling parameter) bezeichnet [2, 96]. Dieser Begriff findet bis heute Verwendung. Beispiele für stark gekoppelte Systeme sind unter

⁴Der Index „s“ steht hier für *engl.* screening length und bezeichnet die Abschirmlänge.

anderem Elektronen auf flüssigen Helium [97, 98], Ionenkristalle [9], kolloidale Suspensionen [6] und schließlich komplexe Plasmen [11, 99]. Da in den atomaren und quantenmechanischen Systemen die Partikel nur Ladungen von einstelligen Elementarladungen aufweisen und gleichzeitig die Abstände sehr gering sind, müssen die Systeme aufwendig auf Temperaturen von wenigen μK bis mK gekühlt werden. Kolloidale Suspensionen hingegen werden in Flüssigkeiten präpariert und eignen sich auf Grund der starken Dämpfung nicht für dynamische Untersuchungen. Bei komplexen Plasmen befinden sich Staubpartikel in Plasmen, deren Ionenspezies Raumtemperatur hat. In diesen Niederdruckplasmen ist die Partikeldynamik praktisch ungedämpft.

Der Kopplungsparameter aus Gl. (2.6) beschreibt Systeme in denen die Partikel mit einer COULOMB-Kraft wechselwirken. Mitte der 80er Jahre sagte IKEZI voraus [32], dass kleine Partikel von $\sim 0,1 \mu\text{m}$ Durchmesser sich wie ein OCP verhalten und den kritischen Wert des Kopplungsparameters für die Kristallisation erreichen sollten. Grund dafür sei die hohe Anzahl an Elektronen, die ein Partikel dieser Größe aufsammeln kann. Ein solches System sollte dazu in der Lage sein sogenannte COULOMB-Kristalle zu bilden. Um den Effekt der DEBYE-Abschirmung zu berücksichtigen, setzte IKEZI das YUKAWA-Potential in den Kopplungsparameter ein [32]:

$$\Gamma_{\text{IKEZI}} = \frac{(Ze_0)^2}{4\pi\epsilon_0 b_{\text{WS}} k_{\text{B}} T} \exp\left(-\frac{b_{\text{WS}}}{\lambda_{\text{s}}}\right) \quad (2.7)$$

und erhielt somit einen zusätzlichen Exponentialfaktor. Diese naive Anpassung des ursprünglichen Kopplungsparameters liefert jedoch keine allgemeingültigen Werte für z. B. den Schmelzpunkt [100]. Eine erste fundamentale Modifizierung stammt von VAULINA *et al.*, die eine Anpassung des Ausdruckes von IKEZI mithilfe eines Korrekturfaktors unter Verwendung der Kopplungsstärke $\kappa = b_{\text{WS}}/\lambda_{\text{s}}$ vorschlugen. Dieser effektive Kopplungsparameter lautet dann [100]

$$\Gamma_{\text{VAULINA}} = \Gamma_{\text{IKEZI}} \left(1 + \kappa + \frac{\kappa^2}{2}\right)^{-1} \quad (2.8)$$

und gilt für Werte von $\kappa = 0 \dots 5$, was den Parameterbereich üblicher Laborexperimente abdeckt. Weitere Verfeinerungen wurden von HARTMANN *et al.* [101] und OTT *et al.* [102] vorgestellt. Im Rest der Arbeit wird Gl. (2.8) für die Berechnung des Kopplungsparameters verwendet.

Komplexe Plasmen können ein Modellsystem für OCPs darstellen. Ein OCP besteht aus N gleich geladenen Punktladungen, die sich in einem neutralisierenden Medium der gegensätzlichen Ladung befinden. Das Gesamtsystem ist somit elektrisch neutral. Das OCP ist ursprünglich ein Modell für Systeme mit COULOMB-Wechselwirkung [1], lässt sich aber in Grenzen auch auf Systeme mit YUKAWA-Potential, sogenannte YUKAWA-Systeme [103], anwenden. Neben dem Kopplungsparameter Γ und wird die Abschirmstärke κ als zusätzlichen Parameter für die vollständige Charakterisierung benötigt. Theoretisch sind YUKAWA-Systeme somit für eine Kombination von (Γ, κ) vollständig beschrieben [100, 39, 104, 105]. Da reale Systeme von den idealisierten Bedingungen der Theorie abweichen können, sind experimentelle Verifizierungen bestehender Modellierungen unverzichtbar. So sind Γ und κ im Experiment

nur über zusätzliche Messungen der Ladung und Abschirmlänge mit entsprechenden Fehlern zugänglich. Auch gelten die theoretischen Beschreibungen des OCP und der YUKAWA-Systeme für uniforme Kristalle ohne zusätzliche Rückstellkräfte einer Falle und unendlicher Ausdehnung. Experimentelle Systeme hingegen sind endlich und befinden sich zwangsläufig in einer Falle. Der Einschluss in einer solchen Falle führt zu Randeffekten, eine HOOKSche Rückstellkraft zwingt dem System auf Grund der abgeschirmten YUKAWA-Wechselwirkung zudem einen Dichtegradienten auf [106, 107]. In den Kristall getragenen Randeffekte und der Dichtegradient führen zur Entstehung von Regionen mit eigener Kristallorientierung. An den Grenzen dieser Regionen treffen unterschiedlich orientierte hexagonale Kristallgitter aufeinander, was zu Defektstellen führt. Trotz dieser Abweichungen konnte z. B. in ausgedehnten Plasmakristallen eine gute Übereinstimmung der Wellendispersion mit der modifizierten Theorie für YUKAWA-Systeme gefunden werden [108, 109].

2.3 Aufladung von Mikropartikeln im Plasma

Bringt man ein Objekt in ein Plasma ein, so lädt es sich durch die Ströme der Ladungsträger auf dieses Objekt elektrisch auf. Das gilt ebenso für Mikropartikel in einem Laborplasma. Die Gleichgewichtsladung ergibt sich aus der Summe aller Ströme auf und von dem Partikel. In einem Laborplasma sind hauptsächlich der Elektronen- und Ionenstrom $I_{e,i}$ auf das Partikel. Weitere Ströme wie z. B. Photoemission sind in Abwesenheit einer UV-Strahlungsquelle vernachlässigbar, spielen jedoch im interstellaren Medium eine Rolle [110].

Die Ausdrücke für die Ströme der Elektronen und Ionen können der Theorie für elektrische Sonden zur Plasmadiagnostik entnommen werden und gehen im wesentlichen auf MOTT-SMITH und LANGMUIR [111] zurück. Ein im Plasma levitierendes Partikel kann durch eine kugelförmige Sonde mit Floatingpotential⁵ Φ_f beschrieben werden. Das Floatingpotential ist genau das Potential, das sich auf einem Körper einstellt, wenn die Summe aller Ströme verschwindet. Im Plasma wird Φ_f durch die Bedingung

$$I_e + I_i = 0 \tag{2.9}$$

bestimmt. Für die Ströme kann z. B. die „orbit motion limited“ (OML) Theorie für sphärische und zylindrische Sonden verwendet werden. Die Theorie beruht auf der Annahme, dass Energie und Drehimpuls der Elektronen und Ionen in der Nähe der Sonde erhalten sind. Sofern Stöße mit Neutralgasatomen vernachlässigt werden können, ist diese Annahme auch gerechtfertigt. Allerdings wies unter anderem ALLEN auf weitere Inkonsistenzen der OML-Theorie hin [112]. Er lieferte zusammen mit BOYD und REYNOLDS bereits 1957 einen alternativen Ansatz [113]. Ihre, nach den Autoren betitelte, ABR-Theorie, berücksichtigt nur die radiale Bewegung der Ladungsträger, mit der Begründung, dass die Drehimpulserhaltung auf Grund von Stößen

⁵In Ermangelung eines angemessenen deutschsprachigen Begriffs wird in dieser Arbeit der englische Term „Floatingpotential“ verwendet.

der Ionen mit Neutralen in der Nähe des Partikel nicht mehr gilt. Die ABR-Theorie kann allerdings nur in einem eingeschränkten Bereich hoher Stoßfrequenzen durch selbstkonsistente Particle-in-Cell (PIC)-Simulationen reproduziert werden [114].

Trotz berechtigter Kritik an der OML-Theorie liefert sie im Regime vernachlässigbarer Stöße gute Ergebnisse oder zumindest eine obere Grenze für das negative Floatingpotential. Zudem sind die Ausdrücke für die Ströme analytisch und eignen sich daher, um die Aufladung von Mikropartikeln zu erläutern. Statt einer Herleitung werden hier nur die zugrunde liegenden Annahmen vorgestellt.

Gegeben sei ein sphärisches Partikel mit Radius a_d und Floatingpotential Φ_f . Die Geschwindigkeiten der Plasmaspezies seien normalverteilt und isotrop. Dann sind die Ströme der Elektronen I_e und Ionen I_i auf ein sphärisches Partikel mit $\Phi_f < 0$ durch

$$I_e = -n_e \bar{v}_{th,e} e_0 \pi a_d^2 \cdot \exp\left(\frac{e_0 \Phi_f}{k_B T_e}\right) \quad (2.10)$$

$$I_i = n_i \bar{v}_{th,i} e_0 \pi a_d^2 \cdot \left(1 - \frac{e_0 \Phi_f}{k_B T_e}\right) \quad (2.11)$$

gegeben. Beide Ströme skalieren mit der Stromdichte $n_\alpha \bar{v}_{th,\alpha}$ der Spezies $\alpha \in \{e, i\}$ und der Querschnittsfläche πa_d^2 des Partikels. Für die Elektronen ist das Potential repulsiv. Der Strom auf das Partikel wird aus diesem Grund durch den BOLTZMANN-Faktor in Gl. (2.10) exponentiell verringert. Für attraktive Potentiale tritt der sogenannte OML-Faktor als Klammerausdruck in Gl. (2.11) auf, der die Zunahme des Stroms durch alle Ionen innerhalb eines bestimmten Radius beschreibt. Mit den Strömen und der Floatingbedingung lässt sich das Floatingpotential numerisch berechnen. Für Argon und ein Temperaturverhältnis der Plasmaspezies von $T_e/T_i = 100$ erhält man die Approximation

$$\Phi_f \approx -2,41 k_B T_e. \quad (2.12)$$

Für typische Argon Hochfrequenzentladungen liegt die Elektronentemperatur im Bereich von $T_e \approx 2 \dots 3 \text{ eV}$ [90], wodurch sich ein Floatingpotential von $\Phi_f \approx 5 \dots 7 \text{ V}$ einstellt. Die Anwendung der Sondentheorie auf kleine Partikel in Plasmen erkannte bereits WHIPPLE für die Beschreibung von staubigen Plasmen im Weltall [115]. Unter Verwendung des Floatingpotentials Φ_f kann das Partikel mit seiner Randschicht als Kugelkondensator aufgefasst werden. Die Ladung des Staubpartikels kann dann über

$$Q_d = 4\pi\epsilon_0 a_d \left(1 + \frac{a_d}{\lambda_s}\right) \Phi_f \quad (2.13)$$

berechnet werden [115]. Für kleine Partikel ($a_d \ll \lambda_s$) vereinfacht sich Gl. (2.13) weiter zu

$$Q_d \approx 4\pi\epsilon_0 a_d \Phi_f. \quad (2.14)$$

Die Ladung skaliert somit für kleine Partikel linear mit dem Partikelradius a_d .

Die Ausdrücke für die Ströme in Gl. (2.11) und (2.10) gelten streng genommen nur bei isotropen Geschwindigkeitsverteilungen und unter Vernachlässigung der Stöße mit Neutralgasatomen. Während der Einfluss auf den Elektronenstrom gering ist, kann der Ionenstrom stark von dem OML-Wert abweichen. Positive Ionen, die durch Ladungsaustauschstöße in der Nähe des Partikels erzeugt werden, können effektiv im negativen Potential des Partikels eingefangen werden. Durch weitere Stöße gelangen diese Ionen entweder auf das Staubpartikel oder können die Potentialfalle verlassen. Dieser Effekt führt zu einer erheblichen Erhöhung des Ionenstroms auf das Partikel, wie analytische Rechnungen und Simulationen zeigen [116–119]. Die resultierende Verringerung des negativen Floatingpotentials, kann dazu führen, dass die Partikelladung nur noch 15 – 25% der OML-Ladung beträgt⁶. Diese Tatsache hat weitere Modellierungen und Simulationen im Feld der staubigen Plasmen motiviert und zu zahlreichen analytischen Ausdrücken und Interpolationsformeln für den stoßbehafteten Ionenstrom geführt [120–123].

Der Situation in der stoßbehafteten Randschicht, in der die Geschwindigkeitsverteilungen der Ionen von einer isotropen Geschwindigkeitsverteilung abweichen, erschweren eine analytische Behandlung zusätzlich [124–126]. Abschätzungen ergeben jedoch, dass der Ionenstrom in der Randschicht von gleicher Größenordnung wie im Plasmavolumen [127] und das negative Floatingpotential somit ebenfalls gegenüber dem OML-Wert reduziert sein sollte.

Modellierungen, die zusätzlich die hochfrequente Variation des elektrischen Feldes in der Randschicht berücksichtigen, zeigen hingegen im stoßfreien Fall eine Erhöhung des negativen Potentials der Staubpartikel [128]. Vollständig selbstkonsistente PIC-Simulationen, die sowohl die äußere Beschaltung, die Aufladung der Partikel und Stöße mit den Plasmaspezies miteinbeziehen, bestätigen jedoch die Verringerung der Ladung gegenüber der OML-Theorie und zeigen zusätzlich einen vertikalen Gradienten des Floatingpotentials in der Randschicht [129].

Die Bestimmung des Floatingpotentials Φ_f aus dem Strömen der Elektronen und Ionen auf das Partikel lässt die Tatsache außer acht, dass die Elektronen nur mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit auf das Partikel treffen und dort „haften“ (*engl.* sticking) bleiben. Diese „sticking probability“ oder der „sticking coefficient“ wird somit stets als Eins angenommen. In der Realität wird dieser Parameter zum Einen kleiner Eins sein und zum Anderen von der Energie der Elektronen abhängen. Somit sollte die tatsächliche Ladung gegenüber der OML-Ladung erheblich reduziert sein. Dedizierte Messungen der sticking probability für Elektronen sind sehr aufwendig und stehen bislang im Feld der staubigen Plasmen noch aus. Modellierungen zeigen zumindest, dass Verunreinigungen sowie die Rauheit der Oberfläche eine untergeordnete Rolle spielen [130].

Da die Partikelladung ein fundamentaler Parameter komplexer Plasmen ist, war die experimentelle Bestimmung bereits in frühen Arbeiten dieses Feldes von hoher Priorität. Die Messungen der Partikelladung erfolgt in der Regel indirekt aus der Wechselwirkung oder Dynamik der Partikel. Resonanzmethoden [82, 131–135] bestimmen die Ladung einzelner oder weniger Partikel aus deren Dynamik. Die Ladung wird aus der Eigenfrequenz eines in der Randschicht oszillierendes Partikel ermittelt. Diese Methode wird anhand der ver-

⁶Diese Abschätzung folgt aus einer numerischen Berechnung nach dem Modell von KHRAPAK *et al.* für $p = 5$ Pa und einem Ionisationsgrad von 10^{-4} [120] und gilt zunächst nur im Plasmavolumen.

feinerten phasenaufgelösten Resonanzmethode in Abschnitt 3.3 vorgestellt. In finiten und ausgedehnten Systemen kann die Partikelladung mithilfe einer Modenanalyse [136–138] oder durch die Messung der Dispersionsrelation thermisch oder extern angeregter Wellen [139, 140] bestimmt werden. Die Überlagerung aller durch eine propagierende Störung ausgelöster Wellen produziert einen MACHkegel, sofern die Propagationsgeschwindigkeit größer als die Schallgeschwindigkeit ist. Eine derartige Störung kann ebenfalls mit einem Laserstrahl erzeugt werden. Die Vermessung des MACHkegels erlaubt eine Messung der Schallgeschwindigkeit, die für eine Ladungsmessung verwendet werden kann [46, 47].

Andere Methoden verwenden die Position der Partikels in der Randschicht [141], die Interpartikelabstände [142] und analog dazu den Dichtegradienten [143]. Ein vergleichsweise neuer Ansatz, die Ladung aus der Struktur des Systems zu bestimmen, kann über die sogenannte „Konfigurationstemperatur“ (*engl.* configurational temperature) erfolgen [144, 145]. In nanostaubigen Plasmen konnte die Ladung ortsabhängig aus den Welleneigenschaften der Staubbichtewellen bestimmt werden [24]. Ein weiterer Ansatz wurde von BRONOLD *et al.* vorgeschlagen. Demnach kann die Ladung über die Verschiebung der Phononenresonanz im Partikelmaterial gemessen werden [146]. Erste Experimente zur Messung der Resonanzverschiebung an Al_2O_3 Nanopartikeln konnten einen derartigen Effekt mit der zur Verfügung stehenden Auflösung jedoch noch nicht detektieren [147].

Wie diese Ausführungen zeigen, ist die exakte Modellierung der Partikelladung in komplexen (staubigen) Plasmen noch nicht vollständig geklärt. Es sind weitere Experimente erforderlich, die z. B. die spezifische Ladung eines einzelnen Partikels, sowie die exakte Größe und Beschaffenheit in Kombination mit einer Plasmadiagnostik und Modellierungen vermessen. Die OML-Theorie kann lediglich einen oberen Grenzwert liefern. Obwohl die absoluten Ladungen für die Kopplung der Partikel entscheidend sind, ist für binäre Mischungen das Ladungsverhältnis relevanter. Da in dieser Arbeit Partikel verschiedener Materialien verwendet werden, könnte eine materialabhängige sticking probability sich auf das Ladungsverhältnis dieser Spezies auswirken. Eine Bestimmung des Ladungsverhältnisses der in dieser Arbeit betrachteten binären Mischungen erfolgt in Kap. 3.6.

2.4 Auf die Partikel wirkende Kräfte

Auf Staubpartikel in einem Laborplasma wirken diverse Kräfte ein. Da in dieser Arbeit binäre Systeme mit Partikeln verschiedener Größe im Fokus stehen, ist die Skalierung der Kräfte mit dem Partikelradius von hoher Relevanz. Im Anschluss an diesen Abschnitt findet sich eine Zusammenfassung der Kräfte in Tabelle 2.1. Die dieser Arbeit zu Grunde liegende Experimente wurden stets mit Partikeln mit einem mittleren Radius von $a_d \geq 1 \mu\text{m}$ durchgeführt. In diesem Fall ist die Gravitationskraft

$$\mathbf{F}^G = m_d \mathbf{g} \quad (2.15)$$

auf die Partikel, mit der Masse des Staubpartikels m_d , der Gravitationsbeschleunigung $\mathbf{g} = g \mathbf{e}_z$ und $g = 9,81 \text{ m/s}^2$, nicht zu vernachlässigen. Auf Grund der Abhängigkeit von der Partikelmasse skaliert die Gewichtskraft mit $|\mathbf{F}^G| \propto a_d^3$.

Da die Partikel elektrisch geladen sind, wirkt in einem elektrischen Feld \mathbf{E} die elektrische Feldkraft

$$\mathbf{F}^E = Q_d \mathbf{E} = 4\pi\epsilon_0 \Phi_d a_d \mathbf{E}. \quad (2.16)$$

auf sie. Die Kraft skaliert linear mit Partikelladung und -radius.

Bei der Bewegung der Staubpartikel relativ zum Hintergrundgas erfahren sie eine Reibungskraft, die durch Stöße mit den Neutralgasatomen verursacht wird. Kritisch für diesen Prozess ist die Kinetik des Gases in der Nähe des Probekörpers, die wesentlich von den Abmessungen des Körpers im Vergleich zur charakteristischen Länge der Strömung abhängt. Eine wichtige Kenngröße ist die Knudenzahl $\text{Kn} = a_d/l_{\text{mfp}}$, die den Partikelradius und die mittlere freie Weglänge l_{mfp} ins Verhältnis setzt. Für $\text{Kn} \gg 1$ geht die Kinetik in den Grenzfall der molekularen Strömung (*engl.* free molecular flow) über. Mit $l_{\text{mfp}} \approx k_B T_n / (\sqrt{32\pi} a_n^2 p)$ erhält man für typische Bedingungen in komplexen Plasmen (Argon, $a_d = 5 \mu\text{m}$ und $p = 5 \text{ Pa}$) eine Knudenzahl von $\text{Kn} \approx 300$ [90, 148]. Für Mikropartikel in einem Niederdruckplasma liegt somit eine molekulare Strömung vor. Mit $\text{Kn} \gg 1$ gilt für die Reibungskraft der von EPSTEIN hergeleitete Ausdruck [149]

$$\mathbf{F}^{\text{drag}} = \delta \frac{4\pi}{3} n_n m_n \bar{v}_{\text{th},n} \mathbf{v}_{\text{drift,d}} a_d^2, \quad (2.17)$$

wobei n_n die Anzahldichte, m_n die Masse und $\bar{v}_{\text{th},n}$ die mittlere thermische Geschwindigkeit der Neutralgasatome sind. Der Parameter δ quantifiziert die Art der Stöße zwischen dem Partikel und den Neutralgasatomen. Die beiden Grenzfälle sind $\delta = 1$ für spekuläre Reflexion und $\delta = 1,44$ für vollständig diffuse Reflexion mit Erhalt der Geschwindigkeiten. In staubigen Plasmen mit typischen Glas- und Polymerpartikeln wurde $\delta = 1,44 \pm 0,05$ gefunden [134]. Mit $p = n_n k_B T_n$ und $\bar{v}_{\text{th},n} = \sqrt{8k_B T_n / \pi m_n}$ lässt sich der Ausdruck in die nützliche Form

$$\mathbf{F}^{\text{drag}} = -m_d \beta \mathbf{v}_{\text{drift,d}} \quad (2.18)$$

überführen. Die Größe β ist dann

$$\beta = \delta \frac{8}{\pi} \frac{p}{a_d \rho_d \bar{v}_{\text{th},n}} \quad (2.19)$$

und wird im Rest der Arbeit als EPSTEIN-Reibungskoeffizient bezeichnet. Das EPSTEIN-Modell wurde im typischen Neutralgasdruckregime und für verschiedene Edelgase als Hintergrundmedium mit guter Übereinstimmung bestätigt [150].

Sofern mehrere Partikel in der Randschicht eingeschlossen sind, muss auch deren Wechselwirkungskraft berücksichtigt werden. Die Wechselwirkung der Partikel kann mit dem YUKAWA-Potential (vgl. Abschnitt 2.1) beschrieben werden [151]. Die Kraft auf ein einzelnes Partikel ergibt aus der Wechselwirkung mit allen anderen Partikeln. Für ein beliebiges k -tes Partikel aus einem Ensemble ist die Kraft auf dieses Partikel dann unter Verwendung von

$$\mathbf{F}^E = Q_d \mathbf{E}(\mathbf{r}) = -Q_d \nabla \Phi(\mathbf{r}) \quad (2.20)$$

mit dem YUKAWA-Potential $\Phi(\mathbf{r})$ durch

$$\mathbf{F}_k^{\text{int}} = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \sum_{k \neq j}^{N-1} \frac{Q_k Q_j}{r_{kj}^2} \left(1 + \frac{r_{kj}}{\lambda_s}\right) \exp\left(-\frac{r_{kj}}{\lambda_s}\right) \mathbf{r}_{kj} \quad (2.21)$$

gegeben, wobei $r_{kj} = |\mathbf{r}_k - \mathbf{r}_j|$ ist. Die Kraftwirkung ist repulsiv, da alle Partikel negativ geladen sind.

Neben den neutralen Gasatomen können auch die Elektronen und Ionen eine Reibungskraft auf die geladenen Staubpartikel ausüben. Die Ionen verursachen die sogenannte Ionenwindkraft (*engl.* ion drag force) auf Staubpartikel, die unter bestimmten Bedingungen von der gleichen Größenordnung wie die Gravitationskraft sein kann. Die Ionenwindkraft setzt sich aus zwei Komponenten zusammen, einem „Collection“-Term, der direkte Stöße berücksichtigt und einem „Orbit“-Term, der den Impulsübertrag über die COULOMB-Kraft beschreibt. Die gesamte Ionenwindkraft ist dann

$$\mathbf{F}^{\text{ion}} = \mathbf{F}^{\text{coll}} + \mathbf{F}^{\text{orbit}}. \quad (2.22)$$

Neuere selbstkonsistente PIC-Simulationen ergeben, dass die Ionenwindkraft für Partikel mit Radien $a_d \geq 1 \mu\text{m}$ vernachlässigbar ist [152, 127]. Daher wird an dieser Stelle auf eine Herleitung verschiedener Modelle verzichtet und lediglich eine grobe Übersicht über die jeweiligen Erweiterungen aufgeführt. Erste Modelle zur Beschreibung der Ionenwindkraft z. B. von BARNES *et al.* [67] unterschätzen die Orbit-Kraft, da nur Ionen mit einem Stoßparameter von einer DEBYE-Länge miteinbezogen werden. Es gibt zahlreiche Anpassungen des Orbit-Terms [153, 154, 94], sowie Erweiterungen für die stoßbehaftete Randschicht [155, 156] und selbstkonsistente Rechnungen [157]. In jedem Fall skaliert die Ionenwindkraft mit dem Querschnitt des Partikelradius $F_{\text{ion}} \propto a_d^2$. Analog zu der Ionenwindkraft muss es auch eine Elektronenwindkraft (*engl.* electron drag) geben [158]. Für typische Verhältnisse von Partikelradius zu Abschirmlänge von $a_d/\lambda_s \sim 10^{-2}$ und Elektronentemperatur zu Ionentemperatur von $T_e/T_i = 10^2$ ist die Elektronenwindkraft jedoch vernachlässigbar.

Da sich in einer Plasmakammer die Elektroden und Wände über Raumtemperatur erwärmen können, spielen unter Umständen auch thermophoretische Kräfte eine Rolle [159]. Thermophorese tritt auf, wenn kleine Partikel sich in einem Medium mit inhomogener Temperaturverteilung befinden. Es sei ein einatomiges Gas (z. B. Argon) angenommen, in dem ein Temperaturgradient vorliegt. Entlang dieses Gradienten ändert sich folglich die Geschwindigkeitsverteilung der Gasatome. Ein ebenfalls in diesem Gas befindliches Testteilchen erfährt Stöße mit den Gasatomen, die, wenn als vollständig elastisch angenommen, vollständig diffus gestreut werden. In diesem Fall übersteigt der Impulsübertrag auf der Seite höherer Temperatur den Impulsübertrag auf der Seite niedriger Temperatur. Es entsteht eine Nettokraftwirkung in Richtung des Gasvolumens mit niedriger Temperatur. Ein Ausdruck für die thermophoretische Kraft im Regime der Molekularen Strömung $\text{Kn} \gg 1$ wurde zuerst von WALDMANN [160] formuliert, nachdem EINSTEIN bereits Abschätzungen diesbezüglich durchgeführt hatte [161]. Die Kraft auf ein sphärisches Partikel mit Radius a_d bei einem Temperaturgradienten ∇T_n

Kraft	Symbol	Skalierung mit dem Partikelradius
Elektrische Feldkraft	\mathbf{F}^E	a_d
Interpartikelkraft	\mathbf{F}^{int}	a_d^2
Ionenwindkraft	\mathbf{F}^{ion}	a_d^2
Neutralgasreibung	\mathbf{F}^{drag}	a_d^2
Thermophoretische Kraft	\mathbf{F}^{th}	a_d^2
Gewichtskraft	\mathbf{F}^G	a_d^3

Tabelle 2.1: Auflistung der wichtigsten auf die Mikropartikel in einem Plasma wirkenden Kräfte, zusammen mit der Skalierung mit dem Partikelradius a_d .

ist demnach

$$\mathbf{F}^{\text{th}} \approx -\frac{32}{15} \frac{a_d^2 k_n}{\bar{v}_{\text{th},n}} \nabla T_n. \quad (2.23)$$

Hier ist k_n die Wärmeleitfähigkeit des Gases. Die thermophoretische Kraft kann zum Einen einen Einfluss auf den Interpartikelabstand haben [162] und zum Anderen für außergewöhnliche Strukturen der Plasmakristalle verantwortlich sein [163]. Für die dieser Arbeit zugrunde liegenden Experimente kann die thermophoretische Kraft zu $|F^{\text{th}}/\nabla T| \approx 2,5 \times 10^{-15} \text{ Nm/K}$ abgeschätzt werden. Der Temperaturgradient muss $\nabla T > 3000 \text{ K/m}$ betragen, damit die thermophoretische Kraft mit der Gravitationskraft auf die Mikropartikel vergleichbar ist. Ein derartiger Temperaturgradient liegt im Experiment nicht vor. Hingegen kann die eng verwandte photophoretische Kraft sehr wohl von gleicher Größenordnung wie die restlichen Kräfte sein (s. Abschnitt 2.6.2).

2.5 Einschluss in der Plasmarandschicht

Wenn Partikel in ein Plasma eingebracht werden, laden diese sich elektrisch auf und können unter bestimmten Bedingungen durch das elektrische Feld in der Randschicht E_z oberhalb der unteren Elektrode zur Levitation gebracht werden. Die Situation ist in Abb. 2.2 skizziert. Die in vertikaler Richtung wirkenden Kräfte sind die Gravitationskraft $-m_d g$ und die elektrische Feldkraft $Q_d E_z$ in der Randschicht. Unter Vernachlässigung der Ionenwindkraft ergibt sich die Levitationsposition in der Randschicht z_0 durch

$$m_d g = Q_d E_z(z_0) \quad (2.24)$$

und wird in Anlehnung an MILLIKANS berühmte Versuche mit Öltröpfchen auch MILLIKAN-Bedingung genannt [164]. Das elektrische Feld in der Plasmarandschicht wird durch die endliche Ladungsdichte $\rho_c = e_0(n_i - \langle n_e \rangle)$ verursacht. In der elektronenverarmten Schicht ist die Ionendichte n_i höher als die zeitlich gemittelte Elektronendichte $\langle n_e \rangle$, sodass $\rho_c > 0$ ist. Der Verlauf des elektrischen Feldes in der Randschicht kann als linear angenommen werden [165]. Unter Verwendung dieser Annahme und der POISSON-Gleichung $\frac{\partial E_z}{\partial z} = \rho_c/\epsilon_0$ folgt für das

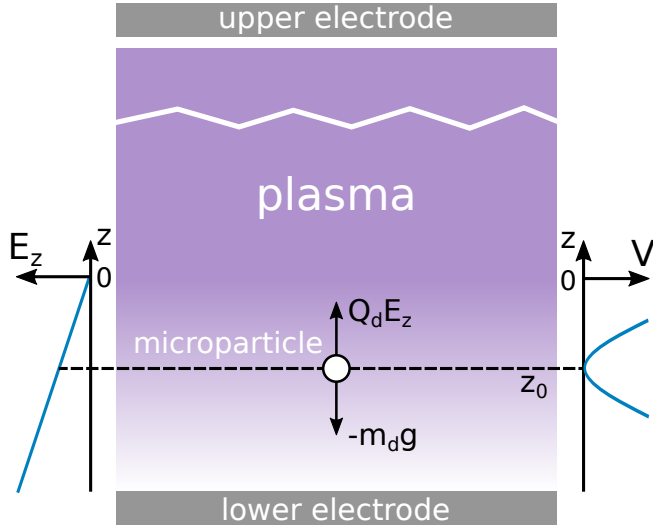


Abbildung 2.2: Skizze der Einschlussbedingung für ein Mikropartikel in der Plasmarandschicht. Das elektrische Feld E_z in der Randschicht oberhalb der unteren Elektrode ist ausreichend, um die Gewichtskraft auf ein Mikropartikel $m_d g$ zu kompensieren. Das elektrische Feld nimmt linear zur Elektrode hin zu. Dadurch kann der vertikale Einschluss harmonisch modelliert werden. Nach [91].

elektrische Feld in der Randschicht

$$E_z(z) = E_z(z_{\text{sh}}) + \frac{\rho_c}{\epsilon_0}(z - z_{\text{sh}}), \quad (2.25)$$

wobei die z_{sh} Position der Schichtkante angibt [92]. Damit ergibt sich für die Levitationsposition der Partikel relativ zur Schichtkante

$$z_0 - z_{\text{sh}} = \frac{m_d \epsilon_0 g}{Q_d \rho_c} - \frac{E_z(z_{\text{sh}}) \epsilon_0}{\rho_c}. \quad (2.26)$$

Mit diesen Annahmen hängt die Levitationsposition bis auf einige Naturkonstanten und die Ladungsdichte nur von dem Verhältnis der Ladung zur Masse, im Folgenden bezeichnet als die *spezifische Ladung*

$$\zeta = \frac{Q_d}{m_d} \quad (2.27)$$

der Partikel ab. Da sich diese Arbeit auf zweidimensionale binäre Mischungen, Systeme mit zwei unterschiedlich stark geladenen Spezies, konzentriert, wird dieser Fall nachfolgend genauer beleuchtet. Wie in Abschnitt 2.3 dargelegt, wird die Ladung für Partikel in der gleichen Plasmaumgebung durch den Partikelradius bestimmt. Um Partikel mit unterschiedlichem Radius auf der selben Levitationshöhe einzufangen, müssen die spezifischen Ladungen entsprechend angeglichen werden. Aus Gl. (2.26) folgt für zwei Spezies 1 und 2

$$\begin{aligned} z_{01} - z_{\text{sh}} &= z_{02} - z_{\text{sh}} \\ m_{d,1}/Q_{d,1} &= m_{d,2}/Q_{d,2} \\ \rho_{d,1} a_{d,1}^2 &= \rho_{d,2} a_{d,2}^2 \end{aligned} \quad (2.28)$$

mit der Staubmassendichte ρ_d . Demzufolge lässt sich ein erfolgreicher Einschluss zweier Partikelspezies in einer Monolage mit Partikeln verschiedener Massendichten realisieren. Das Verhältnis der Partikelradien

$$\frac{a_{d,1}}{a_{d,2}} = \sqrt{\frac{\rho_{d,2}}{\rho_{d,1}}} \quad (2.29)$$

skaliert allerdings mit der Wurzel des Dichteverhältnisses und erfordert somit nennenswerte Unterschiede in der Dichte für hohe Ladungsverhältnisse (vgl. Gl. (2.14)).

Unter der Annahme eines linear ansteigenden elektrischen Feldes in der Randschicht [165] kann der vertikale Einschluss mit dem Potential eines harmonischen Oszillators modelliert werden. Die Rückstellkraft ist in diesem Fall

$$F_z^c = -m_d \omega_{0z}^2 (z - z_0), \quad (2.30)$$

wobei ω_{0z} die Eigenfrequenz des Partikels in der vertikalen Potentialfalle ist. Eine Messung von $\omega_{0z} \propto \sqrt{Q_d/m_d}$ liefert die spezifische Ladung und ist mit der in Abschnitt 3.3 beschriebenen phasenaufgelösten Resonanzmethode möglich. Da alle Partikel gleichnamige Ladungen tragen, muss in den verbleibenden Raumrichtungen ebenfalls ein Einschluss gewährleistet sein.

In der Regel führt eine Vertiefung in der unteren Elektrode zu einer annähernd parabolischen Verformung der Äquipotentiallinien [166, 167], sodass der horizontale Einschluss durch eine Rückstellkraft der Form

$$\mathbf{F}_{xy}^c = -m_d \begin{pmatrix} \omega_{0x}^2 x \\ \omega_{0y}^2 y \end{pmatrix} \quad (2.31)$$

modelliert werden kann. Mit sphärischen Vertiefungen kann die Einschlussstärke angenähert über $\omega_{0xy}^2 \propto g/R_c$ berechnet werden, wobei R_c der Radius der Vertiefung ist [168]. Für zylindrische Vertiefungen entscheidet das Verhältnis aus Tiefe und Durchmesser, ob die Modellierung mit einer parabolischen Falle angemessen ist [167]. Ein harmonischer Einschluss ist hingegen für viele Analysemethoden gut modellierbar [43, 144, 106, 168]. Anisotrope Fallen lassen sich durch asymmetrische Vertiefungen erzielen, sodass $\omega_{0x} \neq \omega_{0y}$ ist und sich die Rückstellkräfte in x - und y -Richtung unterscheiden. Durch die Modifikationen der Einschlussbedingungen können auch spezielle Geometrien wie COULOMB- bzw. YUKAWA-Bälle realisiert werden [37, 169].

Der Ion Wake

Ohne zusätzlich bereitgestellte Kräfte sedimentieren Mikropartikel im Schwerfeld der Erde in die untere Randschicht des Plasmas. Dort ist die Quasineutralität des Plasmas nicht mehr gegeben. Zudem strömen positive Ionen aus dem Plasmavolumen in die Randschicht, so dass die Geschwindigkeitsverteilung dieser Plasmaspezies nicht mehr als isotrop angenommen werden kann. Negativ geladene Staubpartikel in der Randschicht wirken wie elektrostatische Linsen, die die strömenden Ionen auf ihren Bahnen ablenken und die Trajektorien unterhalb der Partikel fokussieren. In diesem stark vereinfachten Bild entsteht im zeitlichen Mittel eine positive Raumladung unterhalb der Partikel, die auch als „Ionenfokus“ bezeichnet wird. Das Vorliegen

einer Strömung legt eine Fluidbeschreibung nahe, in der die Ionendichteerhöhung im Schatten des umströmten Partikel analog zum Kielwasser eines Schiffes (*engl.* wake) als „Ion Wake“⁷ bezeichnet wird. Das Phänomen des Ion Wakes ist Gegenstand zahlreicher Modellierungen, sowie numerischer und experimenteller Arbeiten [170–172]. Auf Grund der zu den Partikeln entgegengesetzten Ladung liegt für diese eine attraktives Potential vor. Selbstkonsistente PIC-Simulationen zeigen, dass der Ion Wake sowohl die Interpartikelkräfte [173], als auch die Ladung anderer Partikel beeinflussen kann [174]. In Monolagen kann die Wechselwirkung mit dem Ion Wake anderer Partikel einen Heizmechanismus darstellen [175], der Instabilitäten wie die Mode Coupling Instability anregen kann [176]. Es konnte zudem gezeigt werden, dass die Wechselwirkung mit dem Ion Wake in binären Systeme eine Auswirkung auf die Wellenausbreitung hat [87]. In Abschnitt 4.5 wird ein Präparationsschema aufgestellt, das die Minimierung der Wechselwirkung mit dem Ion Wakes für die Experimente mit binären Mischungen in dieser Arbeit berücksichtigt.

2.6 Wechselwirkung mit Laserlicht

Lasermanipulation ist eine etablierte Methode im Feld der komplexen Plasmen, um die Dynamik der Staubpartikel gezielt zu beeinflussen. Im Gegensatz zur Manipulation mit elektrischen [177, 178] oder magnetischen Feldern [179–184], was sich durch die hohe elektrische Ladung der Partikel zunächst anbietet, findet durch die Laserstrahlung eine vernachlässigbare Beeinflussung der Plasmaspezies statt. Auf Grund der geringen Masse der Staubpartikel und der vernachlässigbaren Dämpfung in der Umgebung eines Niederdruckplasmas kann bereits mit Laserleistungen im Bereich von wenigen hundert Milliwatt eine ausreichende Kraftwirkung erzielt werden. Die Partikel werden dabei auf Geschwindigkeiten von mehreren Millimetern pro Sekunde beschleunigt. Die Wechselwirkung kann über zwei Mechanismen stattfinden: Die Lichtstreuung an dem Partikel führt zu einer Nettokraft in Ausbreitungsrichtung des Strahls. Im Teilchenbild kann dies auch mit einem Impulsübertrag der Photonen auf das Partikel verbildlicht werden. Dies wird als Licht- oder Strahlungsdruck bezeichnet [185–188]. Die zweite Komponente ist von indirekter Natur. Wird das Partikel durch das Laserlicht lokal an der Oberfläche erwärmt, so führt die Wechselwirkung der Gasatome mit diesem erhitzten Teil der Oberfläche zu einer Nettokraft, deren Richtung jedoch von der ersten Komponente abweichen kann [189, 190]. Diese photophoretische Kraft entspricht im Prinzip einer lokal auftretenden Thermophorese (vgl. Abschnitt 2.4). Da die Aufheizung des Partikels aus der Absorption von Energie aus dem elektromagnetischen Feld des eingestrahlten Lichts resultiert, ist eine komplizierte Modellierung erforderlich.

Zur quantitativen Beschreibung der Lichtstreuung an sphärischen, homogenen und isotropen Kugeln kann die Lösung der MAXWELL-Gleichungen nach GUSTAV MIE [191] herangezogen werden. Diese Lösung wird kurz als LORENZ-MIE-Theorie bezeichnet. Die entsprechenden Ausdrücke können der Standardliteratur entnommen werden [192, 193]. Die Kernparameter dieser Beschreibung sind der Größenparameter $x = 2\pi a_d/\lambda$ und der relative komplexe Brechungsindex

⁷In dieser Arbeit wird der englische Begriff „Ion Wake“ verwendet.

der⁸ $m = n + i\nu$. Dieser ist normiert mit dem Brechungsindex des umgebenen Mediums. Der erste Parameter setzt die Größe des Partikels mit der Wellenlänge des einfallenden Lichts λ ins Verhältnis. Der Realteil des Brechungsindex ist das Verhältnis aus der Lichtgeschwindigkeit im Medium des Partikelmaterials und der Vakuumlichtgeschwindigkeit c_0 . Der Imaginärteil ν gibt die Absorption von Licht im Partikelmaterial an. Die Berechnungen in diesem Abschnitt sind stets mit einer Wellenlänge von $\lambda = 532 \text{ nm}$ durchgeführt worden, entsprechend einer monochromen Lichtquelle im Experiment.

2.6.1 Strahlungsdruck

Bereits zu Beginn des 17. Jahrhunderts vermutete JOHANNES KEPLER einen von der Sonnenstrahlung ausgehenden Lichtdruck, als er die stets von der Sonne abgewandten Kometenschweife studierte. Dieser Erklärungsversuch ist auch heute noch gültig, sofern der Kometenschweif vornehmlich aus Staub besteht. Auch MAXWELL erklärte 1873 die Notwendigkeit der Existenz eines solchen Drucks und berechnete den Lichtdruck auf eine reflektierende Fläche [185]. Der durch den Einfall parallelen Lichts mit Intensität I auf eine ebene Fläche verursachte Druck ist

$$p_{\text{rad}} = \frac{I}{c_0}(1 + \rho). \quad (2.32)$$

Hier sind c_0 die Vakuumlichtgeschwindigkeit und $\rho \in [0, 1]$ das Reflexionsvermögen der Fläche. Für einen perfekten Absorber wird der Klammerausdruck Eins und für einen perfekten Reflektor offensichtlich Zwei. Unabhängig hiervon leitete BARTOLI 1876 ohne Kenntnis von MAXWELLS Ergebnis einen äquivalenten Ausdruck für den Strahlungsdruck⁹ anhand einer thermodynamischen Betrachtung her, der allerdings erst 1884 veröffentlicht wurde [186]. Sowohl MAXWELL als auch BARTOLI erkannten, dass dieser Druck sehr klein sein sollten. Zuerst nachgewiesen wurde die Existenz nahezu zeitgleich von NICHOLS und HULL [187] sowie LEBEDEW [188] mithilfe von Torsionspendeln in einem evakuierten Glasgefäß.

Mittlerweile haben sich zahlreiche Anwendungen für die Kraftwirkung des Lichts ergeben, hauptsächlich in der kontaktlosen Manipulation von kleinen Partikeln. So kann bei Strahlen mit Intensitätsprofil die Lichtbrechung innerhalb transparenter Partikel zu einer weiteren Kraftkomponente führen. Neben dem in Ausbreitungsrichtung des Lichts wirkenden Strahlungsdrucks kann eine, lateral dazu wirkende, sogenannte Gradientenkraft auftreten, die das Partikel zum Intensitätsmaximum hin beschleunigt. Dieser 1970 von ARTHUR ASHKIN entdeckte Effekt [194] begründete das Feld der Optischen Pinzetten (*engl.* optical tweezers)¹⁰, die mittlerweile als Standardwerkzeug in der Mikrobiologie und Biochemie eingesetzt werden [196], und bescherte ASHKIN (zusammen mit DONNA STRICKLAND und GÉRARD MOUROU) 2018 den Nobelpreis in Physik [197]. In den letzten Jahren sind derartige Apparaturen auch im Feld

⁸Im Rest der Arbeit wird lediglich der Ausdruck „komplexer Brechungsindex“ verwendet, es ist jedoch stets der relative komplexe Brechungsindex gemeint.

⁹BARTOLI betrachtete ausschließlich einen perfekten Reflektor, daher tritt in der Herleitung nur der Fall mit einem Reflexionsvermögen von $\rho = 1$ auf.

¹⁰Eine umfassende Übersicht über das Feld der Optischen Pinzetten ist in Ref. [195] zu finden.

der komplexen Plasmen erfolgreich als Werkzeug zur strukturellen [198] und dynamischen [199] Manipulation sowie zur Vermessung des elektrischen Feldes in der Plasmarandschicht eingesetzt worden [200].

Für Partikel mit einem Größenparameter $x = 2\pi a_d/\lambda < 10^3$ gilt Gl. (2.32) nicht mehr exakt. Grund hierfür sind die in diesem Regime auftretenden Interferenzen der Lichtwelle im Partikel, die eine Behandlung des Problems mithilfe der LORENTZ-MIE-Theorie erfordern. Der Strahlungsdruck hängt in diesem Regime von x und dem komplexen Brechungsindex m ab. Zur präzisen Modellierung des Strahlungsdrucks ist die Verwendung des richtigen Formalismus entscheidend. Das kann anhand des effektiven normierten Querschnitts für Extinktion

$$q_{\text{ext}} = q_{\text{sca}} + q_{\text{abs}} \quad (2.33)$$

veranschaulicht werden. Dieser setzt sich aus den normierten Querschnitten für Streuung q_{sca} und Absorption q_{abs} zusammen. Extinktion ist die Abschwächung des Lichts bei der Interaktion (Streuung und Absorption) mit dem Partikel, also diejenige Abschwächung im Vergleich zur einfallenden Intensität, die ein Detektor hinter einem solchen Partikel messen würde. q_{ext} ist das Verhältnis aus der an dem Partikel gestreuten und absorbierten Energie $W_{\text{sca}} + W_{\text{abs}}$ pro Zeiteinheit zur Intensität des einfallenden Lichts I und dem Partikelquerschnitt πa^2 . Für das Verständnis der Abhängigkeit des Strahlungsdrucks von der Partikelgröße ist eine Betrachtung des Streuquerschnitts q_{sca} hilfreich. Eine Berechnung von $q_{\text{sca}} = q_{\text{ext}} - q_{\text{abs}}$ ist in Abb. 2.3 für typischerweise verwendete Partikel mit $n = 1,68$ als Funktion des Partikelradius gezeigt. Gezeigt ist einen Fall ohne Absorption ($\nu = 0$) und ein Fall mit moderater Absorption ($\nu = 10^{-2}$). Der Streuquerschnitt ist

$$q_{\text{sca}} = \frac{2}{x^2} \sum_{j=1}^{\infty} (2j+1) \left[|a_j|^2 + |b_j|^2 \right] \quad (2.34)$$

wobei die Koeffizienten $a_j(x, m)$ und $b_j(x, m)$ Funktionen des Größenparameters und komplexen Brechungsindex sind. Für die Berechnung dieser Koeffizienten existieren etablierte Codes z. B. auch für MATLAB® [201]. Als Abbruchkriterium für die Reihenentwicklung wird $j_{\text{max}} = 2 + x + 4x^{\frac{1}{3}}$ verwendet [193]. Unterhalb von $a_d = 10^{-1} \mu\text{m}$ befindet sich das RAYLEIGH-Regime in dem $q_{\text{sca}}(a_d)$ einem Potenzgesetz der Form $q_{\text{sca}}(a_d) \propto a_d^4$ folgt. Im sogenannten MIE-Regime ($10^{-1} \mu\text{m} \lesssim a_d \lesssim 10^2 \mu\text{m}$ oder $10^0 < x < 10^3$) ist $q_{\text{ext}}(a_d)$ eine stark oszillatorische Funktion. Der Streuquerschnitt hängt hier empfindlich von der exakten Partikelgröße ab. Im Falle eines nicht-absorbierenden Partikels ist $q_{\text{sca}} = q_{\text{ext}}$. Dann geht $q_{\text{sca}}(a_d)$ oberhalb von $a_d = 10^2 \mu\text{m}$ gegen den Grenzwert $\lim_{x \rightarrow \infty} q_{\text{ext}}(x(a_d)) = 2$. Dies ist als Extinktionsparadoxon bekannt [202, 203]. Für große $x(a_d)$ kann die wesentlich einfachere geometrische Optik verwendet werden. Im Falle eines absorbierenden Partikels wird lediglich der Grenzwert von q_{sca} herabgesetzt, wie die orange Kurve in Abb. 2.3 zeigt. Der Verlauf von q_{sca} verdeutlicht, dass für Staubpartikel mit typischen Durchmesser von $a_d = 1 \dots 10 \mu\text{m}$ eine Berechnung des Strahlungsdrucks mithilfe der geometrischen Optik zu großen Fehlern führen kann.

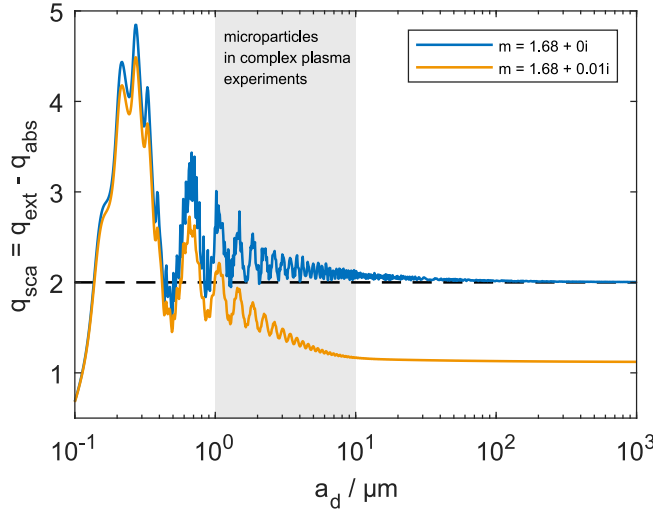


Abbildung 2.3: Normierter Streuquerschnitt q_{sca} als Funktion des Partikelradius a_d ohne Absorption (blau) und mit moderater Absorption (orange, $\nu = 10^{-2}$). Unterhalb von $a_d = 10^{-1} \mu\text{m}$ befindet sich der Bereich der RAYLEIGH-Streuung. Der Bereich mit starken Oszillationen von q_{sca} ist das MIE-Regime. Hier hängt die effektive Streuung empfindlich vom exakten Partikelradius ab. Für $a_d > 10^2 \mu\text{m}$ geht q_{sca} gegen einen Grenzwert (geometrische Optik).

Bereits in seiner Dissertation „Der Lichtdruck auf Kugeln von beliebigem Material“ im Jahre 1908 leitete PETER DEBYE einen allgemeingültigen Ausdruck für den Strahlungsdruck her [204]. Hier wird der Klammerausdruck $(1 + \rho)$ aus Gl. (2.32) durch den sogenannten Strahlungsdruckquerschnitt (*engl.* radiation pressure efficiency) q_{pr} ersetzt [193, 204], die Kraft des Strahlungsdrucks lautet mit $F^{\text{rad}} = p_{\text{rad}} \pi a_d^2$

$$F^{\text{rad}} = I \frac{q_{\text{pr}}}{c_0} \pi a_d^2. \quad (2.35)$$

Der normierte Querschnitt für den Strahlungsdruck gibt an, wie viel Energie durch die Streuung und Absorption von Licht auf das Partikel übertragen wird und hängt erneut vom Größenparameter x sowie dem komplexen Brechungsindex m des Partikels ab. Der Strahlungsdruckquerschnitt q_{pr} lässt sich mithilfe von q_{ext} , q_{abs} und q_{sca} wie folgt schreiben [193]

$$\begin{aligned} q_{\text{pr}} &= q_{\text{ext}} - q_{\text{sca}} \langle \cos(\theta) \rangle \\ &= q_{\text{abs}} + q_{\text{sca}} [1 - \langle \cos(\theta) \rangle]. \end{aligned} \quad (2.36)$$

Der Mittelwert des Kosinus vom Streuwinkels $\langle \cos \theta \rangle$ ist der sogenannte „Asymmetrieparameter“, der das Streuverhalten bezüglich θ quantifiziert. Falls das Licht isotrop gestreut wird, so ist $\langle \cos \theta \rangle = 0$. Die Terme in Gl. (2.36) berechnen sich mithilfe der Theorie für Lichtstreuung durch

$$\begin{aligned} q_{\text{ext}} &= \frac{2}{x^2} \sum_{j=1}^{\infty} (2j+1) \Re\{a_j + b_j\} \\ q_{\text{sca}} \langle \cos \theta \rangle &= \frac{4}{x^2} \left[\sum_j \frac{j(j+2)}{j+2} \Re\{a_j a_{j+1}^* + b_j b_{j+1}^*\} + \sum_j \frac{2j+1}{j(j+1)} \Re\{a_j b_j^*\} \right]. \end{aligned}$$

Abb. 2.4 zeigt q_{pr} als Funktion des Partikelradius a_d für ein Partikel mit $n = 1,3$ (lila) und

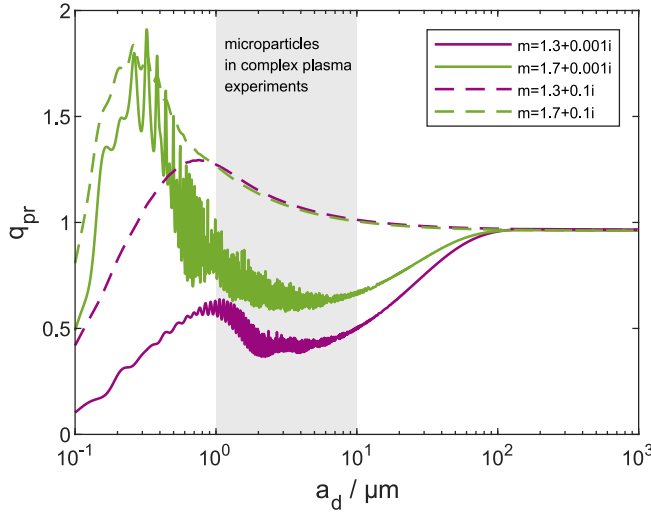


Abbildung 2.4: Strahlungsdruckquerschnitt q_{pr} als Funktion des Partikelradius a_d für verschiedene Brechungsindizes $n = 1,3$ (lila) und $n = 1,7$ (grün). Für stark absorbierende Partikel (gestrichelt) ist q_{pr} unabhängig von Realteil im relevanten Größenbereich. Für schwächer absorbierende Partikel zeigt sich eine komplexe und stark oszillatorische Abhängigkeit vom Radius. Analog zum Streuquerschnitt geht q_{pr} für große Radien gegen einen Grenzwert.

eines mit $n = 1,7$ (grün) in halblogarithmischer Darstellung. Die Realteile des Brechungsindex markieren näherungsweise die Grenzen der kommerziell erhältlichen Mikropartikel [205]. Es sind zwei Fälle des Absorptionsvermögens gezeigt: Die durchgezogenen Linien entsprechen einer schwachen Absorption ($\nu = 10^{-3}$), wie sie teilweise in Lichtstreuexperimenten gemessen wurde [206, 207]. Im Gegensatz dazu zeigen die gestrichelten Linien den Verlauf für den Fall stark absorbierender Partikel ($\nu = 10^{-1}$). Analog zum Streuquerschnitt q_{sca} geht der Strahlungsdruckquerschnitt q_{pr} für $a_d > 10^2$ gegen einen Grenzwert $\lim_{x \rightarrow \infty} q_{sca} \approx 1$. Im relevanten Bereich der Partikelradien $a_d = 1 \dots 10 \mu\text{m}$ kann q_{pr} abhängig von der Absorption um einen Faktor Zwei abweichen. Für stark absorbierende Partikel ab $1 \mu\text{m}$ hingegen ist q_{pr} unabhängig von n . Allerdings zeigt sich für schwach absorbierende Partikel eine komplexe oszillatorische Abhängigkeit vom Partikelradius. Hier ist eine genaue Berücksichtigung der exakten Partikeleigenschaften notwendig, sofern diese zur Verfügung stehen. In Kap. 5 wird daher ein besonderer Fokus auf den Einfluss des Absorptionsvermögens ν gelegt.

Der Strahlungsdruck beschleunigt das Partikel, abgesehen von der am Anfang des Abschnitts erwähnten zusätzlichen Gradientenkraft, ausschließlich in Ausbreitungsrichtung des Strahls. Die indirekte photophoretische Kraft hingegen kann sowohl in als auch entgegen der Ausbreitungsrichtung des Lichts wirken.

2.6.2 Photophorese

Der Begriff „Photophorese“ wurde 1918 von FELIX EHRENHAFT geprägt, als er Versuche zur Kraftwirkung von Licht auf Materie an kleinen Silberkugeln durchführte [189]. Da er sowohl positive, als auch negative Kräfte bezüglich der Ausbreitungsrichtung des Lichts beobachtete, vermutete er zwei Komponenten der Kraftwirkung: Eine direkt durch den Lichtstrahl selbst verursachte, den Strahlungsdruck, und eine indirekte, durch das umgebene Medium verursachte Kraft. Die Existenz der zweiten Komponente wurde bereits 1901 ebenfalls von ERNEST NICHOLS und GORDON HULL vermutet [187]. Die Summe beider Kraftwirkungen

bezeichnete EHRENHAFT als Photophorese (*engl.* photophoresis)¹¹. Nachweisen konnte er die zweite Komponente jedoch nicht, so dass er einen Einfluss des umgebenden Mediums ausschloss. IRENE PARANKIEWICZ wiederholte die Experimente mit Schwefel- und Selenpartikeln, die beide eine starke negative Photophorese zeigten [190], allerdings erneut ohne scheinbaren Einfluss des Mediums. Da zeitgleich an der Theorie des Radiometers gearbeitet wurde, vermuteten einige Autoren, dass es sich bei der zweiten Komponente um eine Radiometerkraft handeln müsste [208–210]. Eine Radiometerkraft wirkt auf ein gegenüber dem Medium ungleichmäßig erwärmten Körper auf Grund des anisotropen Impulsübertrags der Atome oder Moleküle des Mediums. Die Modellierungen zeigten, dass die photophoretische Kraft eine ebensolche Radiometerkraft sein müsste. Aus den Arbeiten wurde zudem deutlich, dass das Regime der Gaskinetik für die Kraft entscheidend ist. Dies erklärt wiederum, warum EHRENHAFT und PARANKIEWICZ keine Gasdruckabhängigkeit feststellen konnten, da sie diese Abhängigkeit bei ihren Experimenten nicht berücksichtigt haben.

Photophorese tritt in vielen Bereichen auf, in denen kleine Partikel von mindestens einigen hundert Nanometern in einem Gas suspendiert sind und mit Licht bestrahlt werden. Bereits seit einigen Jahrzehnten wird der Einfluss von photophoretischen Kräften auf die Residenzzeiten von Aerosolpartikeln in der Stratos- und Mesosphäre diskutiert [211–214]. Abhängig von den Partikeldurchmessern und der Levitationshöhe kann Photophorese diese Residenzzeiten stark erhöhen. Bereits bei der Planetenentstehung kann Photophorese die Umverteilung verschieden großer Staubteilchen in protoplanetaren Scheiben beeinflussen [215]. Ein Verfahren namens „photophoretic velocimetry“ nutzt die photophoretische Kraft um die Größenverteilung von Partikelpollen zu bestimmen [216, 217]. Ebenso kann die photophoretische Kraft eingesetzt werden, um Partikel nur mithilfe eines einzelnen geeigneten Laserstrahls einzufangen und levitieren lassen zu können [218]. Die bereits im vorherigen Abschnitt erwähnten Optischen Pinzetten können durch die Ausnutzung der photophoretischen Kraft stark im Funktionsumfang erweitert werden. So kann ein Partikel nicht nur lateral zum Strahl eingefangen werden, es kann auch entlang der Strahlachse vor und zurück bewegt werden [219].

Der Mechanismus der photophoretischen Kraftwirkung ist in Abb. 2.5 stark vereinfacht skizziert. Ein (Sub-)Mikropartikel befindet sich in einem Gas mit Temperatur T_n . Im thermischen Gleichgewicht nimmt die Partikeloberfläche ebenfalls die Gastemperatur an. Eine Lichtquelle, z. B. ein Laserstrahl, erwärmt eine Seite des Partikels stärker als den Rest der Oberfläche (roter Punkt). Die Temperatur dieses Punktes übersteigt die Temperatur des ungestörten Gases T_n . Gasatome, die mit dieser Seite des Partikels stoßen, nehmen ein thermisches Gleichgewicht mit der heißen Partikeloberfläche an und verlassen das Partikel mit einer höheren Temperatur, als vor dem Stoß. Auf Grund des dritten NEWTONschen Axioms erfährt das Partikel eine entgegengesetzte Impulsänderung. Im zeitlichen Mittel entsteht eine Nettokraft F_{ph} , die in die entgegengesetzte Richtung des erhitzten Punktes zeigt.

Wie der Mechanismus der photophoretischen Kraft exakt beschrieben werden muss, hängt von der vorliegenden Gaskinetik ab. Die Gaskinetik lässt sich mit der Knudsenzahl $Kn = l_{mfp}/a_d$ beschreiben. Für $Kn \gg 1$ geht die Kinetik in den Grenzfall der Molekularen

¹¹In dieser Arbeit werden die Begriffe „Strahlungsdruck“ und „photophoretische Kraft“ für die beiden Komponenten der Kraft verwendet.

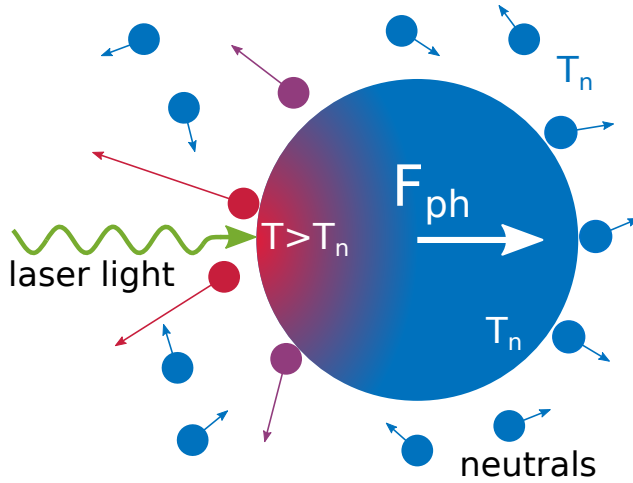


Abbildung 2.5: Skizze der photophoretischen Kraft. Ein Partikel wird von einer Seite mit Laserlicht bestrahlt. Das Partikelmaterial absorbiert die Energie der elektromagnetischen Strahlung abhängig von den optischen Eigenschaften. Bildet sich ein Bereich mit stark erhöhter Temperatur aus, so werden Gasatome, die mit dieser Stelle stoßen, das Partikel mit einer höheren Geschwindigkeit verlassen. Dies führt zu einer stärkeren Impulsänderung des Partikels in die der erhitzten Stelle gegenüberliegende Richtung. Nach [215].

Strömung über. In diesem Fall ist die mittlere freie Weglänge l_{mfp} wesentlich größer als die Partikelabmessungen und Stöße in der Umgebung des Partikels können vernachlässigt werden. Da alle Experimente in dieser Arbeit bei niedrigen Gasdrücken von wenigen Pascal durchgeführt wurden, beschränkt sich die Beschreibung auf das Regime der molekularen Strömung (vgl. Abschnitt 2.4).

Die Anstrengungen, für diesen Fall einen Ausdruck der photophoretischen Kraft herzuleiten, wurden hauptsächlich im Feld der Atmosphärenphysik unternommen, in dem vordergründig Aerosole betrachtet werden. Wichtige Meilensteine wurden unter anderem durch PREINING [220], HIDEY und BROCK [211], sowie BERESNEV *et al.* [221] erreicht. Eine aktuelle Erweiterung der Modelle für hohe Lichtintensitäten stammt von LOESCHE *et al.*, die für geringe Intensitäten in das Modell von BERESNEV *et al.* übergeht. Die photophoretische Kraft kann mit dem Modell von LOESCHE *et al.* durch [222]

$$F^{\text{ph}} = - \frac{\alpha_{\text{th}} \alpha_{\text{m}} p J_1 \pi a_{\text{d}}^2}{3 \hat{T}_{\text{n}} \left[\frac{k_{\text{d}}}{a_{\text{d}}} + 4 \epsilon \sigma_{\text{SB}} \tilde{T}^3 + \alpha_{\text{th}} \alpha_{\text{m}} p \frac{\bar{v}_{\text{th,n}}}{T_{\text{n}}^-} \right]} I \quad (2.37)$$

berechnet werden. Die Faktoren α_{th} und α_{m} sind Koeffizienten für die thermische Akkomodation und Impulsakkommodation, für die in der Regel $\alpha_{\text{th}} \in [0, 1]$ und $\alpha_{\text{m}} \in [0, 1]$ gilt. Diese beeinflussen hauptsächlich das Verhalten der Gasatome nach dem Stoß mit dem Staubpartikel. Im Falle vollständiger Akkomodation sind die Gasatome beim Stoß im thermischen Gleichgewicht mit der Partikeloberfläche und die Austrittsrichtung ist von stochastischer Natur.

Entscheidend für die photophoretische Kraft ist die Tatsache, dass ein Gasatom vor dem Stoß mit der erhitzten Oberfläche des Partikels eine niedrigere Temperatur hat, als nach dem Stoß. Dies wird in Gl. (2.37) anhand der Größe $\hat{T}_{\text{n}} = \sqrt{T_{\text{n}}^+ T_{\text{n}}^-}$ quantifiziert. Hier sind T_{n}^- die Neutralgastemperatur vor dem Stoß mit dem Partikel und T_{n}^+ die mittlere Temperatur eines Neutralgasatoms nach dem Stoß. Weiter ist \tilde{T} die effektive Temperatur der Partikeloberfläche, mit der die Abstrahlung von Energie nach dem STEFAN-BOLTZMANN-Gesetz beschrieben werden kann. Die drei Terme in eckigen Klammern im Nenner von Gl. (2.37) sind Mechanismen der Leistungsdissipation. Diese vermindern die inhomogene Erwärmung der Oberfläche und

infolge dessen die photophoretische Kraft. Von links nach rechts sind dies die Wärmeleitung auf der Partikeloberfläche $\hat{T}_n k_d / a_d$, die thermische Abstrahlung von Energie $4\sigma_{\text{SB}} \epsilon \tilde{T}^3 \hat{T}_n$ und der Wärmetransport in das umgebene Gas

$$h(p) = \alpha_{\text{th}} \alpha_m p \bar{v}_{\text{th},n} \hat{T}_n / T_n^- . \quad (2.38)$$

In diesen Termen treten die Wärmeleitfähigkeit des Partikelmaterials k_d , der Emissionsgrad ϵ und die STEFAN-BOLTZMANN-Konstante $\sigma_{\text{SB}} = 5,67 \times 10^{-8} \text{ W}/(\text{m}^2 \text{K}^4)$ auf. Da die Effekte interdependent sind und zudem von der eingestrahnten Leistung abhängen, müssen neue effektive Temperaturen eingeführt werden. Es sind

$$\tilde{T} = \frac{1}{2} \left(\sqrt{\frac{\sqrt{2}h}{\sigma_{\text{SB}} \epsilon \sqrt{\Psi}}} - 2\Psi - \sqrt{2\Psi} \right) \quad (2.39)$$

$$\bar{T} = \frac{h(p)T_n^- + \sigma_{\text{SB}} \epsilon (3\tilde{T}^4 + T_{\text{rad}}^4) + I/4}{h(p) + 4\sigma_{\text{SB}} \epsilon \tilde{T}^3} \quad (2.40)$$

$$T_n^+ = T_n^- + \alpha_{\text{th}} (\bar{T} - T_n^-) . \quad (2.41)$$

Der Übersichtlichkeit halber wurden die Hilfsvariablen

$$\Psi = \frac{\frac{\sqrt[3]{2}}{\sigma_{\text{SB}} \epsilon} \chi^{2/3} - 8\sqrt[3]{3} h(p)T_n^- - 2\sqrt[3]{3} (I + 4\sigma_{\text{SB}} \epsilon T_{\text{rad}}^4)}{2 \cdot 6^{2/3} \sqrt[3]{\chi}} \quad (2.42)$$

$$\chi = \sigma_{\text{SB}} \epsilon \left(\sqrt{81h(4)^4 + 12\sigma_{\text{SB}} \epsilon (4h(p)T_n^- + (I + 4\sigma_{\text{SB}} \epsilon T_{\text{rad}}^4))^3} + 9h(p)^2 \right) \quad (2.43)$$

definiert. T_{rad} ist die Strahlungstemperatur des umgebenden Mediums.

Das Modell von LOESCHE *et al.* zeigt eine erstaunliche Übereinstimmung mit COMSOL® Simulationen [222]. Für kleine Intensitäten des eingestrahnten Lichts ist die Erhöhung der Oberflächentemperatur gering und es kann $\hat{T}_n \approx T_n \approx \tilde{T}$ angenommen werden. In diesem Fall geht Gl. (2.37) in das Modell von BERESNEV *et al.* über. Bei hochintensiver Strahlung, z. B. durch Laser, gilt diese Annahme jedoch unter Umständen nicht. Dann kann unter Verwendung dieser Vereinfachungen die berechnete photophoretische Kraft um mehrere Größenordnungen von der realen Kraft abweichen [222].

Um den Einfluss der eingestrahnten Leistung auf die durch Wärmeleitung, -strahlung und -transport dissipierte Leistung genauer zu betrachten, sind diese Terme in Abb. 2.6 als Funktion von I aufgetragen. Obwohl keine Literaturwerte für die verwendeten Mikropartikel zur Verfügung stehen, sind die Wärmeleitfähigkeiten der gängigen im Experiment verwendeten Partikelmaterialien im Bereich von $0,1 \text{ W}/(\text{m K}) < k_d < 1,5 \text{ W}/(\text{m K})$ zu erwarten [223]. An dieser Stelle wird die untere Grenze $k_d = 0,1 \text{ W}/(\text{m K})$ angenommen, da dieser Wert dicht an den Wärmeleitfähigkeit der Polymerpartikel liegt. Weiter werden $\alpha_{\text{th}} = \alpha_m = \epsilon = 1$, $p = 10 \text{ Pa}$ und $a_d = 5 \mu\text{m}$ angenommen. Die größte Unsicherheit liegt ohne zusätzliche Informationen in den Akkomodationskoeffizienten und dem Emissionsgrad. Wie in der Grafik zu erkennen ist, stellt die Wärmeleitung auf der Partikeloberfläche über mehrere Größenordnungen den

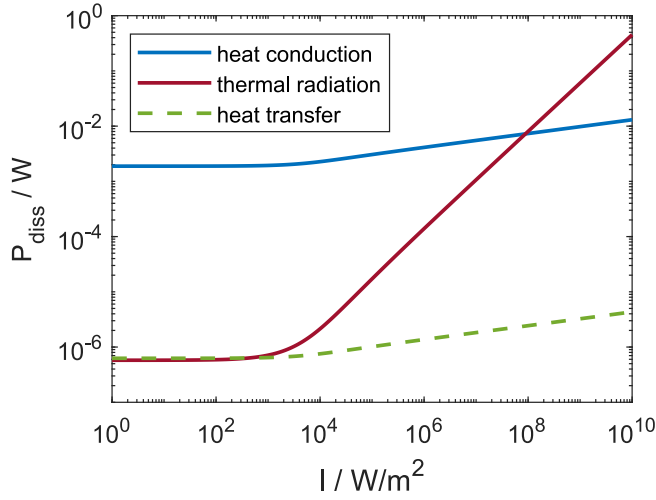


Abbildung 2.6: Vergleich der Leistungsdissipationsmechanismen auf der Partikeloberfläche. Dargestellt ist die dissipierte Leistung P_{diss} als Funktion der Bestrahlungsintensität I . Die Mechanismen sind die Wärmeleitung auf der Oberfläche, thermische Strahlung und Wärmetransport in das Gas (s. Gl. (2.37)). Die Komponenten sind für $\alpha_{\text{th}} = \alpha_{\text{m}} = \epsilon = 1$, $p = 10 \text{ Pa}$, $k_{\text{d}} = 0,1 \text{ W/(m K)}$ und $a_{\text{d}} = 5 \mu\text{m}$ berechnet. Wärmeleitung auf der Oberfläche (blau) ist für einen großen Bereich von I der dominante Mechanismus.

dominanten Effekt dar. Erst ab einer Intensität $I > 10^8 \text{ W/m}^2$ überwiegt die thermische Strahlung als Dissipationsmechanismus. Im Experiment verwendete Dauerstrichleistungen liegen jedoch stets unter diesem Wert. An dieser Stelle sei zudem vorweg genommen, dass die Partikel in den Experimenten dieser Arbeit nur einer sehr kurzen Bestrahlung ausgesetzt wurden. Die effektive Bestrahlungsintensität kann zu $I_{\text{eff}} \approx 10^3 \text{ W/m}^2$ abgeschätzt werden. Zusammen mit der berechtigten Annahme $\epsilon < 1$ kann für Mikrometergroße Partikel bei niedrigen Drücken und moderaten Intensitäten die Wärmeleitung auf der Oberfläche als dominanter Prozess identifiziert werden.

Mit dieser geringen effektiven Bestrahlungsintensität geht eine ebenso geringe Temperaturerhöhung einher. Hiermit lässt sich auch die Annahme einer vollständigen Akkomodation begründen. Dies wird ebenso durch Messungen zur EPSTEIN-Reibung und dem dort auftretenden Parameter δ unterstützt. Das δ charakterisiert die Art der Stöße mit Neutralen (spekulär oder diffus) und nimmt in den Experimenten den Grenzwert $\delta = 1,44 \pm 0,05$ für diffuse Reflexion an [134]. Eine vollständige diffuse Reflexion ist ein Zeichen für eine stochastische Natur der Stöße und somit für vollständige Akkomodation. In diesem Fall ist $\alpha_{\text{th}} = \alpha_{\text{m}} = 1$ und Gl. (2.37) reduziert sich zusammen mit $\hat{T}_{\text{n}} \approx T_{\text{n}}$ drastisch zu

$$F^{\text{ph}}(p) = -\frac{I}{3} \frac{J_1}{k_{\text{d}}} \frac{p}{T_{\text{n}}} \pi a_{\text{d}}^3. \quad (2.44)$$

Unter Verwendung dieser Annahmen skaliert die photophoretische Kraft linear mit dem Neutralgasdruck p und mit der dritten Potenz des Partikelradius a_{d} .

Bisher noch nicht näher betrachtet wurde die Größe J_1 . Dies ist der sogenannte Asymmetriefaktor (*engl.* asymmetry factor)¹² der die genaue Verteilung der aus der elektromagnetischen Welle absorbierten Energie und damit auch die Temperaturverteilung auf der Oberfläche des Partikels beschreibt. Der Asymmetriefaktor nimmt Werte aus dem Intervall $J_1 \in [-\frac{1}{2}, \frac{1}{2}]$ an. Im Grenzfall eines vollständig absorbierenden schwarzen Körpers ist $J_1 = -\frac{1}{2}$. Zur Vereinfachung des Problems wird dieser Grenzwert oft angenommen [224]. Für Polymer- oder

¹²Der „asymmetry factor“ J_1 ist nicht mit dem „asymmetry parameter“ $\langle \cos \theta \rangle$ aus Abschnitt 2.6.1 zu verwechseln.

Glaspartikel, die typischerweise in staubigen Plasmen verwendet werden, ist diese Annahme allerdings schwer zu begründen. Messungen des Imaginärteils des komplexen Brechungsindex in Lichtstreuexperimenten deuten eher auf einen moderaten Absorptionskoeffizienten der Partikel hin [206]. Für ideale nicht absorbierende Partikel und für Partikel mit homogener Temperaturverteilung auf der Oberfläche verschwindet J_1 . Ein Ausdruck für J_1 wurde zuerst von YALAMOV *et al.* aufgestellt [225]. Demnach berechnet sich der Asymmetriefaktor über die Integration der Ergiebigkeit B über das Kugelvolumen nach

$$J_1(n, \nu, x) = \frac{3n\nu x}{2} \int_0^\pi \sin(2\theta) d\theta \int_0^1 \bar{r}^3 B(\bar{r}, \theta) d\bar{r}. \quad (2.45)$$

Im letzten Integrand ist $\bar{r} = r/a_d$ der normierte Partikelradius. Obwohl der Asymmetriefaktor nur vom Größenparameter und dem komplexen Brechungsindex abhängt, ist die Berechnung nicht trivial. Die Integration erfolgt über die sogenannte normalisierte Ergiebigkeit (*engl.* source function)

$$B = \frac{|\mathbf{E}(\bar{r}, \theta, \phi)|^2}{E_0^2}, \quad (2.46)$$

die eng mit dem POYNTING-Vektor $S = 1/2 \mathbf{E} \cdot \mathbf{E}^*$ verwandt ist. Dabei sind $\mathbf{E}(\bar{r}, \theta, \phi)$ das elektrische Feld in Kugelkoordinaten innerhalb des Partikels selbst und E_0 die Feldstärke des einfallendes Lichts. Ausdrücke für die Komponenten des elektrischen Feldes können der LORENTZ-MIE-Theorie entnommen werden. Diese sind [226, 227]

$$E_r = -\frac{\cos \phi}{m^2 \bar{r}^2} \sum_{j=1}^{\infty} i^{j+1} (2j+1) d_j \psi_j(m\bar{r}) P_j^{(1)}(\cos \theta) \quad (2.47)$$

$$E_\theta = \frac{\cos \phi}{m\bar{r}} \sum_{j=1}^{\infty} i^j E_j (c_j \psi_j(m\bar{r}) \pi_j(\cos \theta) - i d_j \psi_j'(m\bar{r}) \tau_j(\cos \theta)) \quad (2.48)$$

$$E_\phi = -\frac{\sin \phi}{m\bar{r}} \sum_{j=1}^{\infty} i^j E_j (c_j \psi_j(m\bar{r}) \tau_j(\cos \theta) - i d_j \psi_j'(m\bar{r}) \pi_j(\cos \theta)) \quad (2.49)$$

wobei $E_j = (2j+1)/(j(j+1))$ ist. Die Koeffizienten c_j , d_j , π_j und τ_j für die Lichtstreuung an sphärischen Partikeln entstammen ebenfalls der LORENTZ-MIE-Theorie. Des Weiteren sind ψ_j die j -te RICCATI-BESSEL-Funktion, die sich über

$$\psi_j(z) = \sqrt{\frac{\pi z}{2}} J_{j+1/2}(z) \quad (2.50)$$

berechnet, $J_j(z)$ die BESSEL-Funktion erster Gattung und $P_j^{(1)}$ die LEGENDRE-Polynome erster Ordnung.

Da die Abhängigkeit der Ergiebigkeit B symmetrisch bezüglich des Azimuthwinkels ϕ ist und somit aufgrund der Kugelsymmetrie keinen Beitrag zum Asymmetriefaktor geleistet wird, kann eine Mittelung bzgl. ϕ durchgeführt werden¹³ [227]. Es ist

$$B(r, \theta) = \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} \frac{|\mathbf{E}(\bar{r}, \theta, \phi)|^2}{\mathbf{E}_0^2} d\phi = B\left(r, \theta, \frac{\pi}{4}\right). \quad (2.51)$$

Numerische Berechnungen der Ergiebigkeit wurden bereits für verschiedene Partikel durchgeführt [227, 226]. Um den Betrag und die Richtung der photophoretischen Kraft berechnen zu können, muss jedoch für einen gegebenen Parametersatz, bestehend aus komplexem Brechungsindex und Größenparameter, das Integral aus Gl. (2.45) unter Berücksichtigung der entsprechenden Ergiebigkeit gelöst werden.

Eine allgemeine Lösung des Integrals wurde von MACKOWSKI¹⁴ veröffentlicht [228]. Mithilfe der Gleichungen

$$\begin{aligned} J_1 &= \frac{-6n\nu}{|m|^2 x^3} \Im \left[\sum_{j=1}^{\infty} \left\{ \frac{j(j+2)}{m} (c_{j+1} c_j^* R_j + d_{j+1} d_j^* R_{j+1}) \right. \right. \\ &\quad \left. \left. - \left(\frac{j(j+2)}{j+1} (c_{j+1} c_j^* + d_j d_{j+1}^*) + \frac{2j+1}{j(j+1)} d_j c_j^* \right) S_j \right\} \right] \end{aligned} \quad (2.52)$$

$$R_j = \frac{\Im \{ m \psi_{j+1}(mx) \psi_j^*(mx) \}}{\Im(m^2)} \quad (2.53)$$

$$\begin{aligned} S_j &= \frac{-i}{2 \Im(m^2)} \left\{ x \left(m |\psi_j(mx)|^2 + m^* |\psi_{j+1}(mx)|^2 \right) \right. \\ &\quad \left. - \left(m + 2(j+1) \frac{\Re(m^2)}{m} \right) R_j + (2j+1) m^* R_{j+1} \right\} \end{aligned} \quad (2.54)$$

kann J_1 numerisch und effizient berechnet werden. Die Reihe wird bei $j_{\max} = 2 + x + 4x^{\frac{1}{3}}$ abgebrochen. Von Interesse ist hauptsächlich, wie J_1 mit dem Größenparameter x und dem Imaginärteil des komplexen Brechungsindex ν variiert. Die numerische Berechnung der Koeffizienten aus der LORENTZ-MIE-Theorie ist mit dem hier verwendeten Codes nur im Bereich des Größenparameters von $x = 10^0 \dots 10^3$ genau. Bei einer verwendeten Wellenlänge von $\lambda = 532 \text{ nm}$ deckt dies Partikelradien von $a_d \approx 0,085 \dots 85 \mu\text{m}$ ab und ist somit ausreichend für alle typisch verwendeten Partikelgrößen in komplexen Plasmen. Der Realteil des Brechungsindex wird vom Hersteller angegeben und scheint auch im Rahmen von wenigen Prozent mit den Messungen verschiedener Gruppen übereinzustimmen [206, 207]. Komplizierter ist die Situation für den Imaginärteil des Brechungsindex. Anpassungen der LORENTZ-MIE-Theorie an die gemessenen winkelaufgelösten Intensitäten aus Lichtstreuexperimenten scheinen nicht sehr sensitiv für die Absorption zu sein. Daher ist der Verlauf von J_1 für verschiedene stark absorbierende Partikel besonders von Interesse. In Abb. 2.7 ist J_1 für verschiedene

¹³Dies geht auf die Eigenschaft des Integrals $(2\pi)^{-1} \int_0^{2\pi} \sin(\phi)^2 d\phi = \sin(\pi/4)$ zurück.

¹⁴Es sei angemerkt, dass Gl. (61) in Ref. [228] einen Druckfehler enthält. Dort tritt ein zusätzliches Minuszeichen auf, was in einem zu kleinen Asymmetriefaktor J_1 resultiert.

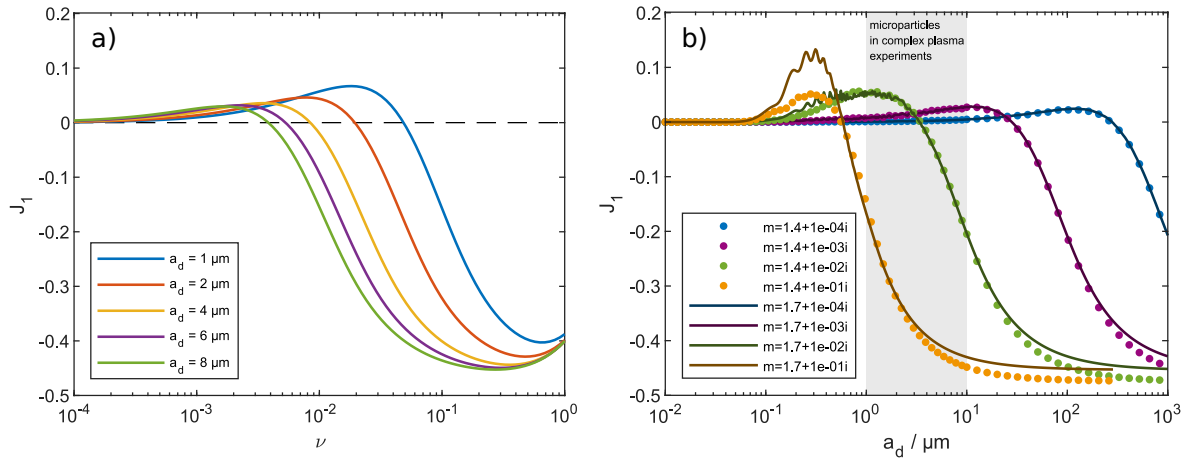


Abbildung 2.7: Berechnungen des Asymmetriefaktors J_1 der photophoretischen Kraft. J_1 ist eine Funktion des Größenparameters $x = 2\pi a_d / \lambda$ und des komplexen Brechungsindex $m = n + i\nu$. Es wurden $\lambda = 532 \text{ nm}$ und, sofern nicht anders angegeben, $n = 1,5$ verwendet. a) Die Abhängigkeit von J_1 vom Absorptionsvermögen zeigt für verschiedene Partikelgrößen ähnliche Kurvenverläufe. Für kleine ν verschwindet J_1 , wird dann positiv und wechselt abhängig von der Partikelgröße das Vorzeichen. b) Abhängigkeit von J_1 vom Partikelradius a_d . Hier hat n nur für sehr kleine Partikel eine Auswirkung auf J_1 . Schwach absorbierende Partikel weisen erst ab $a_d > 10 \mu\text{m}$ einen Asymmetriefaktor $J_1 \neq 0$ auf.

Imaginärteile des Brechungsindex und Partikelgrößen dargestellt. Der reale Brechungsindex der typischerweise verwendeten Partikelmateriale liegt im Bereich von $n = 1,4 \dots 1,7$. Sofern nicht anders angegeben, wurde hier ein Realteil von $n = 1,5$ verwendet. Es sollen an dieser Stelle die wichtigsten Eigenschaften von J_1 diskutiert werden. In Abb. 2.7 a) ist J_1 als Funktion des Imaginärteils ν und für fünf Partikelgrößen dargestellt. Der Imaginärteil ist direkt proportional zum Absorptionsvermögen des Materials. Die ν -Achse ist logarithmisch skaliert, da das Absorptionsvermögen über mehrere Größenordnungen relevant sein kann. Für kleine ν verschwindet J_1 , unabhängig von a_d und n . Mit steigender Absorption wird J_1 zunächst positiv und damit die photophoretische Kraft negativ (Kraftwirkung entgegengesetzt zur Ausbreitungsrichtung). Abhängig von der Partikelgröße nimmt J_1 bei einem bestimmten Absorptionsgrad ein Maximum an. Die Position des Maximums ist dabei umgekehrt proportional zum Partikelradius. Für größere Absorptionsvermögen ändert J_1 das Vorzeichen, die Kraft wird positiv. Ist das Absorptionsvermögen sehr hoch, so wird die Energie nicht nur auf einer Seite des Partikels dissipiert. Für die hier verwendeten Parameter ist dies oberhalb von $\nu = 10^{-1}$ der Fall. Für größere ν wird J_1 wieder weniger negativ, da der erhitzte Anteil der Partikeloberfläche zunimmt. J_1 wird maximal, wenn das Partikel möglichst anisotrop erhitzt wird. Realistische Imaginärteile für die typischen Partikelsorten liegen im Bereich von $10^{-4} \dots 10^{-1}$ [206, 207], wodurch $J_1 \in [-\frac{1}{2}, \frac{1}{10}]$ sein kann.

Die exakte Abhängigkeit von der Partikelgröße ist in Abb. 2.7 b) gezeigt. Die Punkte zeigen den Verlauf von J_1 für einen Realteil von $n = 1,4$ und die durchgezogenen Linien für $n = 1,7$. Für kleine Partikelradien, die im Bereich weniger Wellenlängen des verwendeten Lichts liegen, verschwindet der Asymmetriefaktor ebenfalls. Der Einfluss des Realteils ist in diesem Parameterregime des Partikelradius nur für kleine Partikel mit hohen Absorptionsvermögen

sichtbar und ansonsten vernachlässigbar. Für stark absorbierende große Partikel (gelbe und braune Kurve) divergiert die Berechnung von J_1 mit dem oben vorgestellten Formalismus bei $v = 10^{-1}$ und $a_d = 300 \mu\text{m}$.

Zusammenfassend kann festgestellt werden, dass J_1 im Regime typischer Mikropartikel in komplexen Plasmen positive und negative Werte annimmt. Das Vorzeichen hängt empfindlich von den exakten Partikeleigenschaften ab. Für ein endliches J_1 müssen kleine Partikel eine entsprechend hohe Absorption ν aufweisen. Der Realteil des Brechungsindex n hat nur für Submikrometerpartikel einen nennenswerten Einfluss. Das Auftreten von sowohl positiver, als auch negativer photophoretischer Kräfte im Experiment ist in jedem Fall plausibel. In Kap. 5 wird J_1 für die im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Partikel berechnet, um einen Vergleich mit gemessenen Werten herstellen zu können.

3 | Experimentelle und numerische Methoden

Um die in Kapitel 2 beschriebenen Systeme dynamisch anzuregen oder den thermodynamischen Zustand gezielt zu beeinflussen, haben sich Laser als etabliertes Manipulationswerkzeug bewährt. So wurden alle Untersuchungen dieser Arbeit am sogenannten Lasermanipulations (LAMA)-Experiment in Kiel durchgeführt, das in diesem Kapitel vorgestellt wird. Das Experiment besteht im Wesentlichen aus drei Komponenten, die alle aufeinander abgestimmt sein müssen. Die Vakuumkammer, in der ein Plasma erzeugt und die Partikel eingefangen werden, die optische Diagnostik und die Manipulationslaser. Zusätzlich kann das Experiment modifiziert werden, um hochauflösende Messungen der spezifischen Ladung der Partikel mithilfe der phasenaufgelösten Resonanzmethode durchzuführen. Zuletzt liefert eine eigens entwickelte Langevin-Molekulardynamik-Simulation Einblicke in die fundamentale Physik binärer komplexer Plasmen. In diesem Kapitel werden diese Methoden vorgestellt und ihr Einsatz bei der Untersuchung der Struktur und Dynamik binärer Mischungen erläutert.

3.1 Die Plasmakammer

Die Kernkomponente des Experiments ist eine Vakuumkammer, in der eine Niederdruckentladung erzeugt werden kann. In dieser Plasmakammer kann das Hintergrundmedium erzeugt und gleichzeitig die Einschlussbedingungen für zweidimensionale komplexe Plasmen bereitgestellt werden. Weiterhin verfügt die Kammer über zahlreiche optischen Zugänge, so dass Laserlicht in die Kammer geleitet und das zu untersuchende System aus verschiedenen Richtungen mit Kameras beobachtet werden kann. Eine schematische Darstellung eines vertikalen Schnitts durch die Kammer ist in Abb. 3.1 gezeigt. Es handelt sich um einen zylindrischen Edelstahlbehälter mit acht in den Zylindermantel eingelassenen Fensteröffnungen. Der Zylinder hat einen Innendurchmesser von 26 cm und eine Höhe von 18 cm. Boden und Deckel verfügen jeweils ebenfalls über eine Fensteröffnung und diverse Flansche für den Anschluss von Vakuumpumpen, Gaszufuhrleitungen und Staubdispenser. Im Zentrum der geerdeten Plasmakammer befindet sich eine vom Rest der Kammer isolierte Elektrode (grün) mit einem Durchmesser von 16 cm, an der im Betrieb eine hochfrequente Wechselspannung mit einer Frequenz von $f_{\text{rf}} = 13,56 \text{ MHz}$ anliegt. Das Signal wird von einem Hochfrequenzspannungsgenerator (im Folgenden HF-Generator) vom Typ COAXIAL RFG50 mit einer maximalen Leistung von $P_{\text{rf,max}} = 50 \text{ W}$ erzeugt. Ein Anpassungsnetzwerk (*engl.* match box) dient der

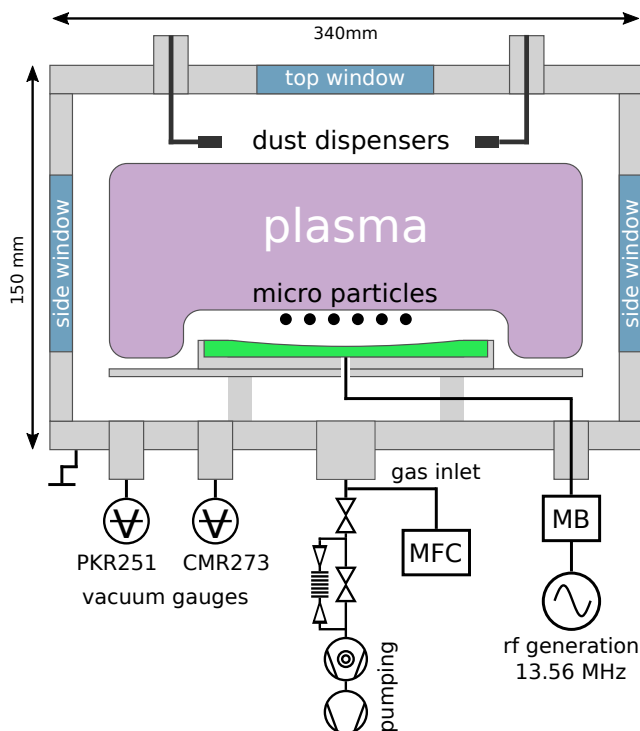
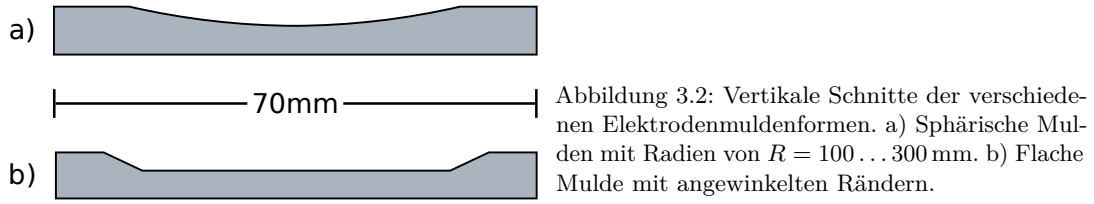


Abbildung 3.1: Skizze der Plasmakammer mit den Vakuumkomponenten und der elektrischen Beschaltung. Über ein Anpassungsnetzwerk (matchbox, MB) liegt eine hochfrequente Wechselspannung mit einer Frequenz von $f_{rf} = 13,56$ MHz an der vom Rest des Kammer isolierten Elektrode (grün) an. Alle hier grau eingefärbten Bauteile sind geerdet. Die Druckmessung erfolgt über zwei unabhängige Vakuummeter (PKR2521 und CMR273). Das Arbeitsgas Argon wird über einen Gasflussregler (mass flow controller, MFC) in die Kammer geleitet. Beide Staubspezies werden über zwei unabhängige Staubsdispenser (dust dispensers) in das Plasma eingebracht.

Impedanzanpassung des äußeren Stromkreises und Plasmas. Die Leistung des HF-Signals wird direkt am Generator gemessen und kann daher von der eingekoppelten Leistung abweichen. Die eingestellte Leistung beträgt bei allen Messungen $P_{rf} = 5 \dots 15$ W. Bei der Entladungsgeometrie handelt es sich um eine asymmetrische kapazitiv-gekoppelte Hochfrequenzentladung. Infolge dessen stellt sich an der getriebenen Elektrode eine sogenannte Biasspannung ein. Messungen der Spitze-Spitze-Spannung U_{SS} und der Biasspannung U_B bei den verwendeten Leistungen ergeben $U_{SS} = 130 \dots 200$ V und $U_B = 50 \dots 90$ V. Im Zentrum der Elektrode können verschiedene Muldenformen eingesetzt werden. Die in dieser Arbeit verwendeten Muldenformen sind in Abb. 3.2 als vertikale Schnitte gezeigt. Es wurden sphärische (a) und flache Mulden mit angewinkelten Rändern (b) entsprechend der erforderlichen experimentellen Einschlussgeometrien verwendet.

Ein Pumpstand des Typs PFEIFFER HiCUBE 80 ECO, der eine Kombination aus Membran- und Turbomolekularpumpe darstellt, ist am Boden der Kammer angeschlossen. Die Gaszufuhr befindet sich ebenfalls am Boden der Kammer, um eine Störung der Staubsysteme durch eventuell auftretende Gasflüsse zu minimieren. Der Gasfluss selbst wird durch einen Massendurchflussregler (*engl.* massflow controller, MFC) des Herstellers MKS geregelt. Typische Gasflüsse liegen im Bereich von $s = 0,5 \dots 2$ sccm. Als Arbeitsgas wird bei allen Messungen Argon verwendet. Für die Druckmessung stehen Vakuummeter mit unterschiedlichen Messprinzipien zur Verfügung. Die allgemeine Drucküberwachung erfolgt mit einem kombinierten Vakuummeter („CombiVac“) des Typs PFEIFFER PKR 251, das den gesamten Druckbereich von $p = 1 \times 10^{-5} \dots 1 \times 10^5$ Pa abdeckt. Im oberen Druckbereich wird der Druck mit einem PIRANI-Vakuummeter und im unteren Druckbereich mit einem Ionisationsvakuummeter gemessen. Beide Messprinzipien sind gasartabhängig, so dass der Messwert



noch mit einem Kalibrierungsfaktor multipliziert werden muss. Der Fehler dieser Druckmessung beträgt zudem $\Delta p_{\text{PKR}} = \pm 30\%$ des Messwertes. Der Arbeitsdruck wird zusätzlich mit einem Kapazitätsvakuummeter des Typs PFEIFFER CMR 273 oder CMR 275 gemessen. Diese Messung ist gasartunabhängig und der Fehler beträgt laut Hersteller lediglich $\Delta p_{\text{CMR}} = \pm 0,15\%$. Der Fehler der Druckmessung mit dem Kapazitätsvakuummeter wird jedoch eher zu $\Delta p_{\text{CMR}} = \pm 0,1$ Pa nach oben hin abgeschätzt. In dieser Kammer kann mit der verwendeten Pumpe ein Enddruck von $p_{\text{end}} = 2 \times 10^{-2}$ Pa erreicht werden. Der Arbeitsdruck liegt bei den durchgeführten Experimenten im Bereich von $p = 2 \dots 10$ Pa. Auf Grund der hohen Pumpleistung des verwendeten Pumpstandes wird ein Bypass mit einem verringerten Rohrdurchmesser genutzt, um die effektiven Pumpleistung zu verringern und den Arbeitsdruck bei sehr niedrigen Gasflüssen zu erreichen.

Die beiden Partikelspezies werden über zwei separate Staubdispenser in das Plasma eingebracht. Dabei handelt es sich um kleine Partikelreservoirs mit einer feinen Bohrung am Boden. Die Staubdispenser befinden sich an Edelstahllarmen, die über eine Vakuumdurchführung an den Flanschen des Kammerdeckels von außen positioniert werden können. Das Einbringen der Partikel erfolgt nach dem Salzstreuerprinzip durch Schütteln des Behälters. Mikrometergroße Partikel, wie sie in diesen Experimenten verwendet wurden, werden in der Regel von Herstellern bezogen, die sich auf Forschungspartikel spezialisiert haben. Die in dieser Arbeit verwendeten Partikel wurden von der MICROPARTICLES GMBH bezogen [205]. Typische Partikelradien liegen im Bereich von $a_d = 3 \dots 6 \mu\text{m}$. Die Partikelmaterialien unterscheiden sich hauptsächlich in der Massendichte, dem Brechungsindex und der Stabilität. Eine Übersicht der wichtigsten Kernparameter verschiedener Partikelmaterialien ist in Tabelle 3.1 aufgelistet. In dieser Arbeit wurden ausschließlich Melamin-Formaldehyd- (MF-) und Siliziumdioxid- (SiO_2 -)Partikel verwendet. Die genaue Präparationsmethode binärer Mischungen aus zwei Partikelspezies beruht auf den Erkenntnissen zusätzlicher Experimente und ist daher erst in Abschnitt 4.5 näher beschrieben.

Material	Abkürzung	$\rho_d / (\text{g/cm}^3)$	n
Polystyrol	PS	1,05	1,59
Polymethyl methacrylat	PMMA	1,19	1,48
Melamin-Formaldehyd	MF	1,51	1,68
Siliziumdioxid	SiO_2	1,85	1,42

Tabelle 3.1: Übersicht der Eigenschaften typisch verwendeter Partikelsorten. ρ_d ist die Massendichte und n der Realteil des Brechungsindex. Die Werte wurden vom Hersteller MICROPARTICLES GMBH übernommen [205].

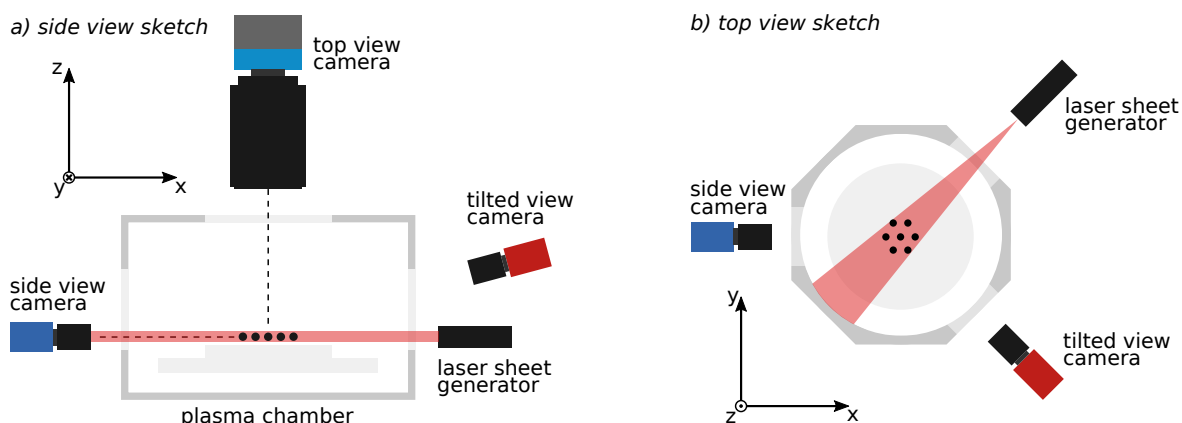


Abbildung 3.3: Schematische Skizze der Kameraanordnung. a) Vertikaler Schnitt durch die Plasmakammer. Alle Objekte wurden der Einfachheit halber in der Schnittebene platziert. Ein Laserliniengenerator (laser sheet generator) mit $\lambda = 660 \text{ nm}$ beleuchtet die Partikel. Das Streulicht wird unter 90° von der Hauptkamera in einer Draufsicht (top view camera) aufgenommen und die Partikeltrajektorien in der $(x-y)$ -Ebene aufgezeichnet. Eine zweite Kamera (side view camera) auf Höhe der Partikel erlaubt die vertikale Vermessung der Staubsysteme. Für weitere Justagearbeiten ist eine dritte Kamera (tilted view camera) unter einem Neigungswinkel auf die Partikel gerichtet. b) Horizontaler Schnitt durch die Plasmakammer mit der korrekten Anordnung des Lasers und der Hilfskameras.

3.2 Bildgebung, Partikelverfolgung und -unterscheidung

Für alle in dieser Arbeit verwendeten Methoden werden die vollständigen Trajektorien der Partikel mit ausreichender Zeitauflösung oder zumindest präzise Momentaufnahmen aller Partikelpositionen benötigt. In binären Mischungen tritt eine zusätzliche Herausforderung auf. Die lediglich um Bruchteile eines Mikrometers in der Größe verschiedenen Partikel müssen allein anhand der Kamerabilder unterschieden werden.

Die Kameraanordnung am LaMa-Experiment ist in Abb. 3.3 dargestellt. In 3.3 a) ist eine Seitenansicht und in 3.3 b) eine Draufsicht gezeigt. Zur Beobachtung der Partikel stehen insgesamt drei Kameras zur Verfügung. Die Hauptkamera ist über dem Fenster des oberen Kammerdeckels angebracht und liefert eine Draufsicht (top view) auf die Partikel. Sie dient der Aufzeichnung der Partikeltrajektorien in der Kristallebene. Für alle Experimente in dieser Arbeit wurde hierfür eine der monochromen Kameras BASLER AVA1600-65KM oder MIKROTRON MC1362 verwendet. Erstere verfügt über einen CCD-Sensor mit 1600×1200 Pixeln mit einer Pixelfläche von $(5,5 \mu\text{m})^2$ und einer Farbtiefe von 8 bit. Bei voller Auflösung sind mit dieser Kamera Aufnahmen mit einer maximalen Bildrate von 65 fps möglich. Die zweite Kamera besitzt einen CMOS-Sensor mit 1280×1024 Pixeln, jedoch mit einer Pixelfläche von $(14 \mu\text{m})^2$. Allerdings erreicht diese Kamera Bildraten von bis zu 500 fps. Je nach benötigtem Abbildungsmaßstab wurde ein 100 mm CANON oder 90 mm PENTAX Macroobjektiv verwendet.

Eine weitere Kamera zeichnet eine Seitenansicht (side view) des Partikelsystems auf und ermöglicht somit die Vermessung der Struktur senkrecht zur Kristallebene. Auf diese Weise wird die zweidimensionale Natur der Systeme verifiziert und zusätzliche Partikel ober- oder unterhalb der Kristallebene identifiziert. Für die Messungen mit der phasenaufgelösten

Resonanzmethode (siehe Abschnitt 3.3) wird ebenfalls diese Kameraansicht verwendet. Eine dritte Kamera (tilted view) blickt unter einem Winkel auf die Partikel und wird für die Justage der Laserheizung benötigt (s. Abschnitt 3.4). Beide Seitenkameras sind vom Typ PROSILICA GE680 und verfügen über einen CCD-Sensor mit VGA Auflösung. Die maximale Bildrate beträgt 200 fps.

Die Partikel werden von einem Laserfächer mit einer Wellenlänge von $\lambda = 660 \text{ nm}$ beleuchtet. Der Fächer wird durch einen Laserliniengenerator des Herstellers SCHÄFTER+KIRCHOFF und eine Zylinderlinse mit einer Brennweite von 75 mm erzeugt. Das an den Partikeln gestreute Licht wird auf die Kamerasensoren abgebildet. Um eine Beeinträchtigung der Kamerabilder durch die Lichtemission des Plasmas selbst und das grüne Licht der Manipulationslaser zu vermeiden, sind die Kameras der Draufsicht und der Seitenansicht mit Interferenzfiltern der Wellenlänge des Beleuchtungslasers ausgestattet. Die angewinkelte Kamera hingegen ist im Gegensatz dazu mit einem 532 nm Interferenzfilter bestückt. Für die Justage ist das Licht der Manipulationslaser mit dieser Kamera sichtbar.

Partikelverfolgung

Um die Trajektorien der Partikel aus aufeinanderfolgenden Bildern zu erhalten, werden die Standardmethoden der Partikelverfolgung (*engl.* particle tracking) angewendet [229–231]. Im ersten Schritt werden die Positionen aller Partikel in jedem Bild bestimmt. Nach einer Korrektur der fehlerhaften Pixel wird ein Schwellwert abgezogen und ein Gaußfilter auf das Bild angewandt. Jedes Partikel wird nun auf dem Bild durch eine Pixelwolke mit eindeutigem Maximum repräsentiert. Die Positionsbestimmung eines Partikels erfolgt aus dem gewichteten Schwerpunkt seiner Pixelwolke. Auf diese Weise kann die Partikelposition mit Subpixelgenauigkeit bestimmt werden [229, 230]. Für eine hinreichende Genauigkeit sollten die Pixelwolken aus einigen zehn bis hundert Pixeln bestehen. Eine aufwendige Gegenüberstellung verschiedener Algorithmen zur Extraktion der Partikelpositionen ist in Ref. [231] zu finden. Sobald die Positionen aller Partikel in allen Bildern vorliegen, können die Trajektorien konstruiert werden. Ist die Partikelanzahl in jeden Bild gleich, so die Partikelverfolgung trivial und erfolgt nach einem „Nächste-Nachbarn-Algorithmus“ (*engl.* nearest neighbor). Hierfür wird im $(n + 1)$ -ten Bild das Partikel im n -ten Bild mit dem geringsten Abstand gesucht. Sobald sich die Partikelzahl ändert, z. B. wenn ein Partikel das beobachtete Volumen verlässt, müssen die verlorenen und hinzugewonnen Partikel mitgeführt und separat verbunden werden.

Partikelunterscheidung

Die Unterscheidung der Partikelspezies erfolgt über die Intensität des gestreuten Lichts. Wie in Abschnitt 2.6 erläutert, hängt die Wechselwirkung mit Licht, so auch die Streuung, von den exakten Partikeleigenschaften ab. Zudem ist die Streuintensität stark richtungsabhängig, wie die Polarkoordinatendarstellung berechneter Streuintensitäten in Abb. 3.4 a) zeigt. Der blaue Punkt markiert die Position des Partikels im Ursprung. Radial sind logarithmisch die absoluten Streuintensitäten in arbiträren Einheiten aufgetragen. Die Berechnung ist für ein MF-Partikel mit einem Radius von $a_{d, \text{MF}} = 4,43 \mu\text{m}$ und Brechungsindex $n_{\text{MF}} = 1,68$ sowie ein SiO_2 -

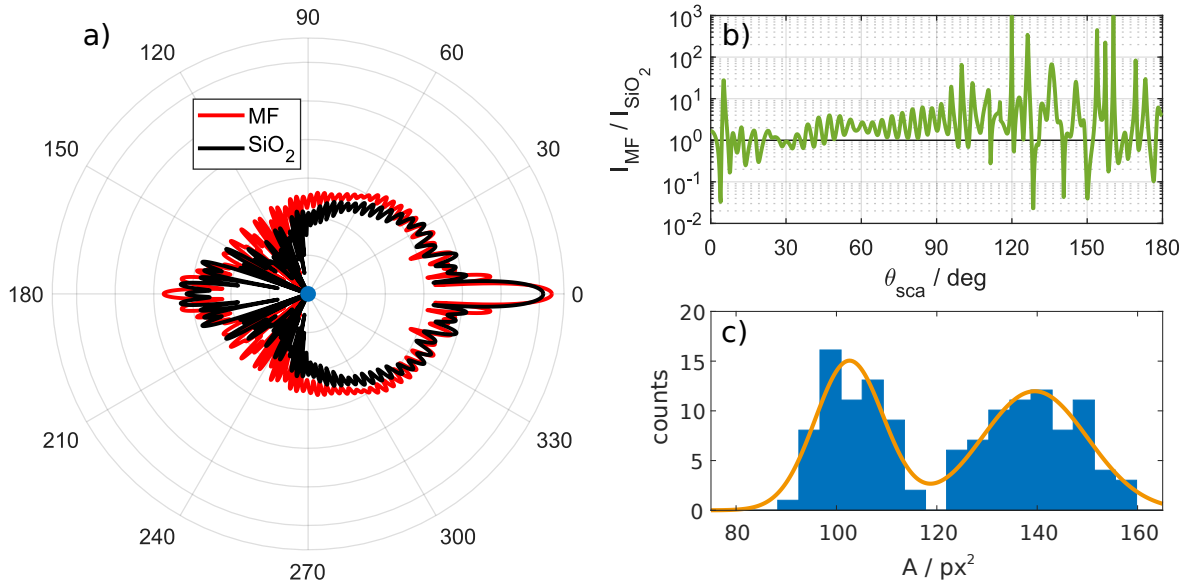


Abbildung 3.4: Lichtstreuung an MF- und SiO₂-Partikeln zur Identifikation der Spezies im Experiment. a) Absolute winkelabhängige Streuintensität eines MF- und SiO₂-Partikels, berechnet mit den Radien $a_{d,MF} = 4,43 \mu\text{m}$ und $a_{d,SiO_2} = 3,69 \mu\text{m}$ sowie den Realteilen des Brechungsindex nach Angabe des Herstellers (s. Tab. 3.1). Die Imaginärteile sind für beide Spezies auf $\nu = 1 \times 10^{-3}$ gesetzt. Die radiale Achse dieser Polardarstellung ist logarithmisch skaliert. b) Verhältnis der Streuintensitäten als Funktion des Streuwinkels in einer halblogarithmischen Darstellung. Im Bereich der Streuwinkel zwischen 45° und 100° ist eine eindeutige Unterscheidung möglich. c) Histogramm der ermittelten Flächen der Pixelwolken einzelner Partikel in einer binären Mischung. Es sind deutlich zwei getrennte Verteilungen auszumachen. Durch Anpassen zweier Normalverteilungen (orange) kann ein Grenzwert bestimmt und die Partikel anhand ihrer mittleren Fläche ihrer Spezies zugeordnet werden.

Partikel mit $a_{d,SiO_2} = 3,69 \mu\text{m}$ und $n_{SiO_2} = 1,42$ durchgeführt, entsprechend der Eigenschaften zweier tatsächlich im Experiment verwendeter Partikelsorten. Unter einen Beobachtungswinkel von 90° unterscheiden sich die Intensitäten um einen Faktor 2,5, wie deutlicher aus dem Verhältnis der Streuintensitäten in Abb. 3.4 b) sichtbar wird. Allerdings zeigt sich auch der stark oszillatorische Charakter der Streuintensitäten. Die genaue Form ist zudem von den exakten optischen Eigenschaften der Partikel abhängig, so dass diese Berechnungen lediglich zur Überprüfung der Plausibilität dieser Methode dienen. Im Streuwinkelbereich von $45^\circ < \theta < 100^\circ$ ist für alle Partikelspezies, deren Radien sich mindestens um die Standardabweichung der Partikelsorten unterscheiden, eine eindeutige Zuordnung anhand der Streuintensitäten möglich. In den anderen Bereichen, sowie Vorwärts- (0°) und - Rückwärtsstreuung (180°) fällt der Unterschied wesentlich geringer aus, so dass eine erschwerte Unterscheidung der Spezies zu erwarten ist. In den Kamerabildern lassen sich die Partikel sowohl durch die maximale Intensität, als auch durch die Fläche auf dem Kamerasensor unterscheiden. Bei der Partikelverfolgung wird dafür die Fläche der Pixelwolke für jedes Partikel und jedes Bild bestimmt. Das Histogramm der ermittelten Flächen zeigt in der Regel zwei getrennte Verteilungen, wie ein Beispiel in Abb. 3.4 c) veranschaulicht. Über eine Anpassung mit zwei Normalverteilungen kann ein Schwellwert ermittelt und die Partikel ihrer Spezies zugeordnet werden.

3.3 Die phasenaufgelöste Resonanzmethode

Für die Charakterisierung (binärer) komplexer Plasmen ist die spezifische Ladung $\zeta = Q_d/m_d$ eine wichtige Kenngröße. Sie bestimmt nicht nur den Einschluss der Partikel in der Randschicht [131], sondern auch deren Wechselwirkung untereinander. Zu den ersten diagnostischen Methoden im Feld der staubigen Plasmen gehört die (vertikale) Resonanzmethode, mit der es möglich ist, die spezifische Ladung in situ zu bestimmen [131–133]. Die Methode misst die dynamische Antwort des Systems auf eine erzwungene Anregung. Bringt man ein System mithilfe einer gezielten Störung kurzzeitig aus seinem (stabilen) Gleichgewichtszustand, so wird es danach in diesen zurückkehren. Die Messung dieser Systemantwort liefert Informationen über das vorliegende System. In der Randschicht eines Plasmas befindet sich ein Staubpartikel auf einer stabilen Levitationshöhe, die durch die elektrische Feldkraft und die Gravitationskraft bestimmt wird (vgl. Abb. 2.2). Unter der Annahme eines linearen Feldverlaufs in der Randschicht [232] ist die Rückstellkraft ebenfalls linear. Wird das Partikel auf Grund einer externen Kraft F_z^{ext} in vertikaler Richtung aus der Gleichgewichtslage ausgelenkt, so wird es eine gedämpfte harmonische Schwingung ausführen. Die Dämpfung wird durch die Reibung des Partikels mit dem Neutralgashintergrund verursacht und anhand des Dämpfungskoeffizienten γ quantifiziert. Dieser ist über $2\gamma = \beta$ mit dem Neutralgasreibungskoeffizienten β verknüpft (s. Gl. (2.19)). Die Bewegungsgleichung in z -Richtung eines derart angeregten Partikels in der Randschicht lautet

$$\ddot{z}(t) = -2\gamma\dot{z}(t) - g + \frac{Q_d E_z(z(t))}{m_d} + \frac{F_z^{\text{ext}}(t)}{m_d}. \quad (3.1)$$

Das elektrische Feld kann bezüglich der Gleichgewichtsposition z_0 als linear ansteigend angenommen [131, 132, 92] und in der Form $E_z(z) = E_z(z_0) + \frac{\partial E}{\partial z}(z - z_0)$ geschrieben werden (s. Kap. 2.5). Die Bewegung relativ zur Gleichgewichtsposition z_0 wird unter Verwendung von $Z = z - z_0$, dem elektrischen Feld $E_z - E_z(z_0) = Z\rho_c/\epsilon_0$ (vgl. Gl. (2.25)) und einer periodischen externen Kraft $F_z^{\text{ext}}/m_d = G \exp(i\omega t)$ durch

$$\ddot{Z} = -2\gamma\dot{Z} - \frac{|Q_d|}{m_d} \frac{\rho_c}{\epsilon_0} Z + G \exp(i\omega t), \quad (3.2)$$

beschrieben, wobei G die Anregungsamplitude ist. Im Experiment wird die externe Kraft durch eine niederfrequente Modulation der HF-Spannung erzielt. Dies resultiert in einer Oszillation des elektrischen Feldes. Ein Vergleich von Gl. (3.2) mit der Differentialgleichung des gedämpften harmonischen Oszillators mit der Eigenfrequenz ω_0

$$\ddot{Z} + 2\gamma\dot{Z} + \omega_0^2 Z = G \exp(i\omega t), \quad (3.3)$$

ergibt für die Eigenfrequenz

$$\omega_0^2 = \frac{|Q_d|}{m_d} \frac{\rho_c}{\epsilon_0}. \quad (3.4)$$

Bei Kenntnis der Ladungsdichte ρ_c am Ort der Partikel erhält man somit aus der Eigenfrequenz die spezifische Ladung $|\zeta| = |Q_d|/m_d$. Im Experiment wird die Amplitude A einer Oszillation bei einer gegebenen Anregungsfrequenz ω gemessen. Mit dem Ansatz $Z(t) = A \exp(i\omega t)$ folgt

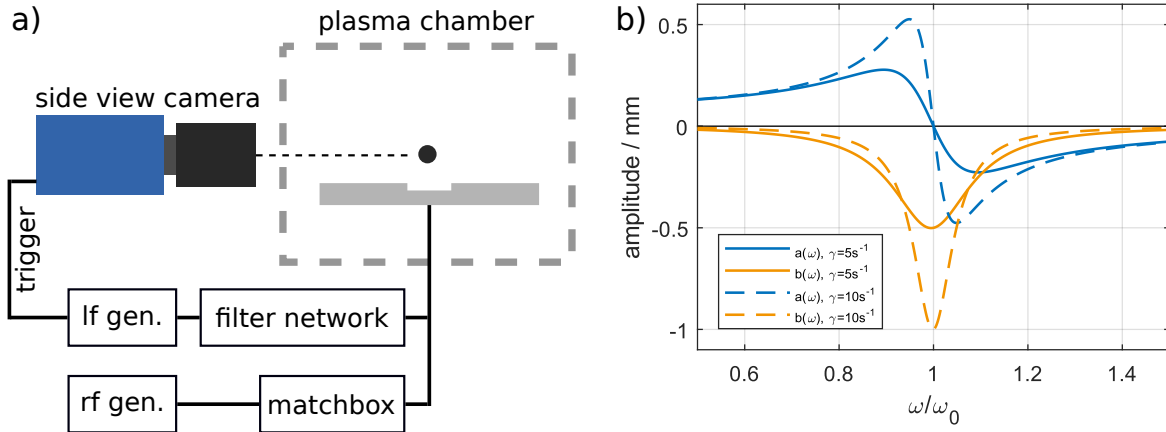


Abbildung 3.5: a) Skizze des experimentellen Aufbaus für die phasenaufgelöste Resonanzmethode (PRRM). Dem HF-Signal wird über ein Filternetzwerk das niederfrequente Signal eines Funktionsgenerators (lf gen.) überlagert. Die Kamera (side view camera) erhält zu verschiedenen Phasen des Anregungssignals ein Triggersignal vom Funktionsgenerator. b) Die PRRM erlaubt die Messung des Real- und Imaginärteils der Resonanzkurve eines gedämpften harmonischen Oszillators (Mikropartikel in der Randschicht eines Plasmas). Die Eigenfrequenz ω_0 lässt sich präzise aus dem Nulldurchgang des Realteils $a(\omega)$ bestimmen. Die Breite des Imaginärteils $b(\omega)$ ist proportional zu der Dämpfung γ .

für die Schwingungsamplitude

$$A(\omega) = \frac{G}{\omega_0^2 - \omega^2 + 2i\gamma\omega} . \quad (3.5)$$

Diese komplexwertige Amplitude kann in ihren Real- und Imaginärteil aufgespalten werden. Es ist also

$$A(\omega) = a(\omega) + ib(\omega) , \quad (3.6)$$

wobei der Real- und Imaginärteil durch

$$a(\omega) = \frac{G(\omega_0^2 - \omega^2)}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + (2\gamma\omega)^2} , \quad (3.7)$$

$$b(\omega) = \frac{2G\gamma\omega}{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + (2\gamma\omega)^2} , \quad (3.8)$$

gegeben sind. Die ursprüngliche Resonanzmethode nutzte den Betrag der Amplitude

$$|A(\omega)| = \frac{G}{\sqrt{(\omega_0^2 - \omega^2)^2 + (2\gamma\omega)^2}} , \quad (3.9)$$

um die Eigenfrequenz ω_0 aus einer Resonanzkurvenmessung zu bestimmen [131].

Die experimentelle Umsetzung einer Resonanzkurvenmessung ist in Abb. 3.5 a) skizziert. Um eine vertikale Oszillation der Partikel anzuregen wird dem HF-Signal ein niederfrequentes Sinussignal überlagert, welches von einem zusätzlichen Funktionsgenerator (lf gen.) erzeugt wird. Die am Funktionsgenerator eingestellte Frequenz entspricht direkt der Anregungsfrequenz $f = \omega/(2\pi)$. Um ein Einkoppeln des HF-Signals in den Funktionsgenerator zu verhindern, ist ein Filternetzwerk zwischen diesen und dem Rest der Schaltung integriert. Die Amplitude aus

Gl. (3.5) muss daher noch mit der Übertragungsfunktion $H(\omega)$ des Filternetzwerks multipliziert werden. Eine von der Seite auf das Partikel gerichtete Kamera (side view camera) zeichnet die vertikale Partikeloszillation auf. Für eine Messungen mit der einfachen Resonanzmethode an Mikropartikeln im Plasma reicht die Einstellung einer im Vergleich zur Partikeloszillation langen Belichtungszeit. Auf diese Weise kann aus einem einzelnen langzeitbelichteten Bild der Betrag der Amplitude $|A(\omega)|$ bei einer gegebenen Anregungsfrequenz ω bestimmt werden. Eine Variation der Anregungsfrequenz ermöglicht die Aufnahme einer vollständigen Resonanzkurve. Die Anpassung des reellwertigen Modells an die Messdaten liefert die Eigenfrequenz ω_0 und die Dämpfung $2\gamma = \beta$, die um einen Faktor 2 von dem EPSTEIN-Reibungskoeffizienten verschieden ist (vgl. Gl. (2.19)).

Eine Verfeinerung der Methode wurde von CARSTENSEN *et al.* [82] in Form der phasenaufgelösten Resonanzmethode (*engl.* phase-resolved resonance method, PRRM) durchgeführt. Hier wird eine Idee verfolgt, die schon in anderen Bereichen der Physik, z. B. beim Phasenkontrastverfahren, erfolgreich war: Neben der Amplitudeninformation wird zusätzlich die Phaseninformation gemessen und so eine Steigerung der Auflösung erzielt. Die Modifikation des bestehenden Aufbaus aus Abb. 3.5 a) besteht lediglich in der zusätzlichen Übermittlung eines Triggersignals vom Funktionsgenerator an die Kamera und einer entsprechenden Anpassung der Messsoftware. Die Kamera zeichnet weiterhin die vertikale Position eines in der Randschicht levitierenden Partikel auf, jedoch mit einer sehr kurzen Belichtungszeit, um eine Momentaufnahme zu erhalten. Die Messmethode funktioniert wie folgt: Das HF-Signal wird mit einem Anregungssignal der Frequenz ω moduliert, so dass das Partikel in der Randschicht oszilliert. Die Kamera wird über den Trigger zu festgelegten Phasen φ des Anregungssignals ausgelöst. Die Bestimmung von Real- und Imaginärteil $a(\omega)$ bzw. $b(\omega)$ erfolgt durch die Messung der instantanen Partikelpositionen $z(\varphi)$ bei $\varphi \in \{0, \pi/2, \pi, 3\pi/2\}$, da diese sich durch

$$a(\omega) = \frac{1}{2} (z_{\varphi=0} - z_{\varphi=\pi}) , \quad (3.10)$$

$$b(\omega) = \frac{1}{2} (z_{\varphi=3\pi/2} - z_{\varphi=\pi/2}) , \quad (3.11)$$

berechnen lassen¹. Der Vorteil der phasenaufgelösten Resonanzmethode lässt sich anhand der Amplitudenanteile $a(\omega)$ und $b(\omega)$ in Abb. 3.5 b) erklären. Die Kurven sind nach Gl. (3.7) und (3.8) berechnet. Zur Verdeutlichung ist die Anregungsfrequenz ω mit der Eigenfrequenz ω_0 normiert. Die durchgezogenen Linien sind für eine Dämpfung von $\gamma = 5 \text{ s}^{-1}$ und die gestrichelten für $\gamma = 10 \text{ s}^{-1}$ berechnet. Der Realteil $a(\omega)$ zeigt exakt bei der Eigenfrequenz ω_0 einen Nulldurchgang. Die Anpassung des Modells ist überaus sensitiv auf die Position des Nulldurchgangs und ermöglicht somit eine hochpräzise Bestimmung der Eigenfrequenz. CARSTENSEN *et al.* haben den Fehler auf $\Delta\omega_0/\omega_0 = \pm 0,1\%$ abgeschätzt [82]. Die Breite des Imaginärteils $b(\omega)$ ist proportional zu der Dämpfung γ . Ein weiterer Vorteil der Methode ist die Möglichkeit, mehrere Partikel gleichzeitig vermessen zu können. Jedoch muss je nach Anordnung der Partikel eventuell die elektrostatische Wechselwirkung der Partikel untereinander im Modell berücksichtigt werden [233, 172]. Eine umfangreiche Übersicht über die Resonanzmethoden im Feld der staubigen Plasmen ist in Ref. [134] zu finden. In

¹Dies ergibt sich aus $z(\varphi) = z_0 + a \cos \varphi - b \sin \varphi$ [134].

Abschnitt 4.2 werden Experimente zur Vermessung der Eigenfrequenz von Partikelpaaren vorgestellt, die essentiell für die Erzeugung zweidimensionaler binärer Mischungen in komplexen Plasmen waren.

3.4 Die Laserheizung als Wärmebad

Für thermodynamische Untersuchungen ist ein Werkzeug erforderlich, mit dem die Temperatur eines Partikelensembles gezielt eingestellt werden kann. Ein derartiges steuerbares Wärmebad oder Thermostat kann z. B. verwendet werden, um das System konstant in einem Zustand zu halten oder Phasenübergänge einzuleiten [224, 234, 61]. Die generelle Idee ist die Nachahmung einer BROWNSchen Molekularbewegung, bei dem die Partikel mit impulsreichen Atomen oder Molekülen des Hintergrundmediums stoßen, wobei diese Stöße zufällig geschehen und die Impulse einer MAXWELL-BOLTZMANN-Verteilung folgen. Die Stoßpartner sind energiereiche Atome oder Moleküle aus dem Rand der Geschwindigkeitsverteilung. Eine derartige Nachahmung wird z. B. in LANGEVIN-Dynamik-Simulationen verwendet, wie sie in Abschnitt 3.5 näher beschrieben werden. Die Idee der Laserheizung ist es nun, die Stöße mit den Atomen des Hintergrundgases durch die zufällige Bestrahlung mit intensivem Laserlicht nachzuahmen. Die in Abschnitt 2.6 eingeführte Laserkraft ist ausreichend, um die Partikel kurzzeitig zu beschleunigen. Um eine zufällige Bestrahlung zu realisieren, werden bewegliche Spiegel verwendet. Auf Grund der einfachen Ansteuerung und dem schnellen Ansprechverhalten haben sich Galvanometerspiegel bewährt. Erste Experimente starteten mit einem einzelnen Laserstrahl und Galvanometerspiegel [224]. Dies führt jedoch zu einer Nettolaserkraft in Ausbreitungsrichtung des Laserstrahls, die das System anisotrop komprimiert. Um diese Kraft zu neutralisieren kann einer zweiter, entgegengesetzt gerichteter Strahl über einen zweiten Galvanometerspiegel verwendet werden [234]. Die Nettolaserkraft verschwindet auf diese Weise entlang dieser Achse. Alternative Konzepte verwenden ebenfalls eine einzelne Achse, jedoch werden die Strahlen auf bogenförmigen Bahnen über die Partikelsysteme gelenkt [235].

Eine Draufsicht der in dieser Arbeit verwendeten Laserheizung ist in Abb. 3.6 skizziert. Statt einer einzelnen Laserachse verfügt der Aufbau über zwei um 90° versetzte Laserachsen, jeweils mit einem entgegengesetzten Laser zur Kompensation der Laserkraft. In dieser Ausführung wurde der Aufbau und die zugehörige Heizmethode von SCHABLINSKI *et al.* entwickelt und erfolgreich eingesetzt [236, 237]. Die Strahlen von zwei diodengepumpten Festkörperlaser (*engl.* diode pumped solid state, DPSS) werden mithilfe von zwei Strahlteilern auf vier Galvanometerspiegel geleitet. Die Manipulationslaser arbeiten bei einer Wellenlänge von $\lambda = 532 \text{ nm}$ und die Strahlungsleistungen betragen $P_{L1} = 5 \text{ W}$ bzw. $P_{L2} = 6 \text{ W}$. Auf Grund zahlreicher optischer Bauteile (Spiegel, Strahlteiler, etc.) im Strahlengang beträgt die an den Partikeln ankommende effektive maximale Leistung nur $P_{L,\text{eff}} \approx 750 \text{ mW}$. Die vier Galvanometerspiegel sind so angebracht, dass die Strahlen unter einem Winkel von $\sim 10^\circ$ auf die Partikelebene auftreffen. In der Ebene entspricht das Profil des Laserpunktes einem elliptisch verformtem GAUSS-Profil. Vor dem Betrieb der Laserheizung müssen die Grenzen des Zielvolumens ermittelt werden. Aus diesen ergeben sich die Maximal- und Minimalwerte der Galvanometerspannungen.

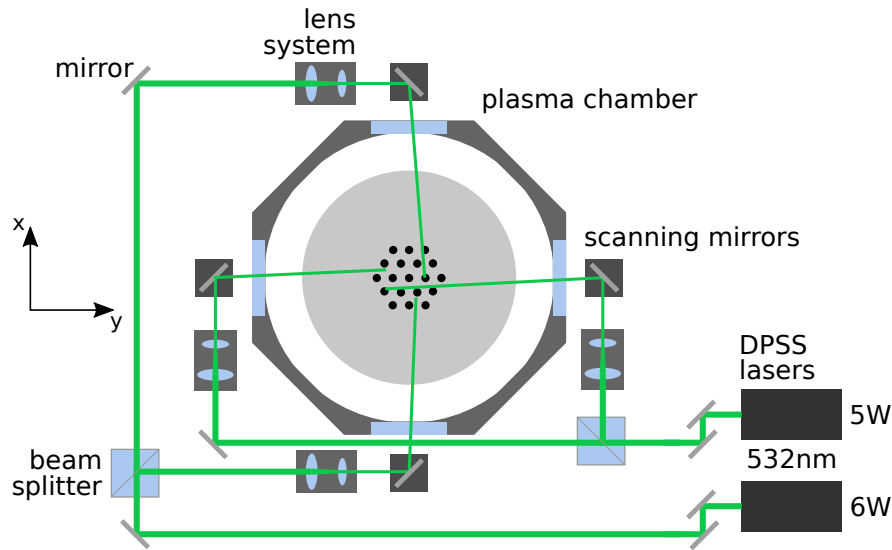


Abbildung 3.6: Schematische Draufsicht der für die Laserheizung benötigten Komponenten. Die Strahlen zweier diodengepumpter Festkörperlaser (DPSS lasers, $\lambda = 532\text{ nm}$) werden mithilfe von Strahlteilern (beam splitter) in insgesamt vier Strahlen aufgeteilt und auf die vier Galvanometerspiegel (*engl.* scanning mirrors) geleitet. Mit Linsen (lens system) wird der Strahldurchmesser verringert und eine höhere Intensität erzielt. Die Galvanometerspiegel werden über eine Software gesteuert, um eine stochastische Bewegung der Laserstrahlen zu erreichen. Die Nutzung entgegengesetzter Strahlen auf beiden Achsen eliminiert jegliche Nettokraft auf das System und verhindert somit das Ausbilden von Strömungen.

Die stochastische Bewegung der Laserstrahlen wird wie folgt erreicht: An den Galvanometern werden Dreieckssignale mit einem entsprechenden Gleichspannungsversatz angelegt, so dass die Minimal- und Maximalspannungen erreicht werden. Die Frequenzen der Dreieckssignale werden jedes Mal bei Erreichen des Minimal- oder Maximalwertes anhand einer gleichverteilten Zufallszahl aus dem Intervall $f_{\text{scan}}/\text{Hz} \in [50, 300]$ neu ausgewählt. Da die vertikale Galvanometerachse nur die Projektion der Fläche abstrahlen muss, sind die Frequenzen für diese Achse entsprechend angepasst. Die Bewegung des Laserstrahls ist hinreichend schnell, so dass jeder Stoß mit einem Partikel als unabhängiges Zufallsereignis angesehen werden kann. Nach dem zentralen Grenzwertsatz muss dann die Überlagerung aller dieser Ereignisse annähernd eine Normalverteilung ergeben. Wichtig ist dabei, dass die Bestrahlungsdauer eines einzelnen Partikels stets klein ist gegenüber der Zeitskala der Partikeldynamik ist. Außerdem muss im zeitlichen Mittel jedes Partikel innerhalb der charakteristischen Abklingzeit des Systems mindestens einen Stoß erfahren haben. Die Abklingzeit entspricht der inversen Dämpfungsrate bzw. dem EPSTEIN-Reibungskoeffizienten (vgl. Kap. 2.4). Die Geschwindigkeitsverteilungen eines mit der Laserheizung manipulierte Plasmakristalls entsprechen MAXWELL-BOLTZMANN-Verteilungen [236]. Damit ist die Laserheizung ein nahezu ideales Wärmebad, mit dem die kinetische Temperatur eines Partikelensembles gezielt eingestellt werden kann.

Bestimmung der kinetischen Temperatur

Aus den Trajektorien aller Partikel können zu jedem Zeitpunkt die Geschwindigkeiten und aus der Geschwindigkeitsverteilung die kinetische Temperatur des Ensembles bestimmt werden. Es muss ein Gleichgewichtszustand vorliegen, um einen Vergleich mit der MAXWELL-BOLTZMANN-

Verteilung durchführen zu können. Mit der Masse der Staubpartikel m_d lautet die eindimensionale MAXWELL-BOLTZMANN-Verteilung

$$g(v) = \left(\frac{m_d}{2\pi k_B T} \right)^{\frac{1}{2}} \exp \left(-\frac{m_d v^2}{2k_B T} \right). \quad (3.12)$$

Durch Anpassen einer Normalverteilung mit Varianz σ^2 an die Geschwindigkeitsverteilung kann die kinetische Temperatur über

$$T_{\text{kin}} = \frac{m_d}{k_B} \langle \sigma_{v_{x,y}}^2 \rangle \quad (3.13)$$

berechnet werden. Hier ist $\sigma_{v_{x,y}}^2$ die Varianz der Geschwindigkeiten in x - und y -Richtung und die Klammern bedeuten eine Mittelung über die x - und y -Richtung. Alternativ kann die logarithmierte Verteilung der quadrierten Geschwindigkeiten v^2 ausgewertet werden. Im Falle einer MAXWELL-BOLTZMANN-Verteilung zeigt diese nach $\ln[g(v)] \propto -mv^2/(2k_B T)$ einen linear abfallenden Verlauf. Die Temperatur berechnet sich aus der Steigung einer an diese Verteilung angepassten Geraden. Eine rudimentäre Methode ist die Berechnung der Temperatur aus der mittleren kinetischen Energie $K = \frac{1}{2} m \langle v^2 \rangle$ und der thermischen Energie $\frac{f}{2} k_B T$, wobei f die Anzahl der Freiheitsgrade ist. Durch Gleichsetzen der Energien ergibt sich die kinetische Temperatur ebenfalls aus

$$T_{\text{kin}} = \frac{m_d \langle v^2 \rangle}{f k_B}. \quad (3.14)$$

Jede dieser Methoden bestimmt die Temperatur zunächst als Ensemblemittelwert, entsprechend der Temperaturdefinition. Durch Ausnutzen der Ergodenhypothese, die besagt, dass in thermodynamischen Systemen durch die stochastische Natur in endlicher Zeit der gesamte Phasenraum abgedeckt wird, kann das Ensemblemittel durch das Zeitmittel ersetzt werden. In diesem Fall können die Geschwindigkeiten verschiedener Zeitpunkte zur Berechnung der Temperatur herangezogen werden. Dabei wird jedoch offensichtlich das Vorliegen eines Gleichgewichtszustandes während des Zeitraums vorausgesetzt. In der dieser Arbeit zugrunde liegenden Datenauswertung wurde die Temperatur stets aus den Geschwindigkeitsverteilungen durch Anpassen einer Normalverteilung gewonnen. Im Gegensatz zu den anderen Methoden erlaubt diese Analyse eine Beurteilung der Verteilungen.

3.5 BADCOP-MD: Eine Langevin-Molekulardynamik Simulation für binäre Mischungen

Zur Einordnung experimenteller Befunde und Exploration interessanter Parameterregime bieten sich Simulationen als komplementäres Computerexperiment an. Bei einer exklusiven Betrachtung der Staubspezies sind Molekulardynamik-Simulationen vollkommen ausreichend, obschon eine selbstkonsistente Verknüpfung der Simulationsparameter nur teilweise möglich ist. Vollständig selbstkonsistente PIC-Simulationen, die sowohl alle Plasmaspezies, als auch den

Aufladungsprozess der Staubpartikel in der Umgebung der Plasmarandschicht berücksichtigen, sind in der Umsetzung sehr aufwendig [129], für grundlegende strukturelle und dynamische Phänomene jedoch weder notwendig noch durchführbar.

Es existieren zahlreiche Simulationsarbeiten zu binären Mischungen geladener Teilchen [81, 238–242], sowohl mit reiner COULOMB-, als auch mit abgeschirmter YUKAWA-Wechselwirkung, die jedoch eine maßgebliche Eigenschaft zweidimensionaler komplexer Plasmen nur unzureichend abbilden. Für die in der Randschicht levitierenden Staubpartikel mit Ladung Q_d und Masse m_d muss stets die MILLIKAN-Bedingung $Q_d E_z = m_d g$ erfüllt sein. Hier ist E_z das elektrische Feld in der Randschicht. In idealen zweidimensionalen komplexen Plasmen besitzen alle Partikel die gleiche spezifische Ladung. Partikel zweier Spezies 1 und 2 mit unterschiedlichen Radien müssen der Bedingung $a_{d,1}^2 \rho_{d,1} = a_{d,2}^2 \rho_{d,2}$ gehorchen, wobei ρ_d die Massendichte der Spezies ist. Wie bereits in Abschnitt 2.5 angedeutet, können Partikel verschiedener Materialien kombiniert werden, um Spezies unterschiedlicher Größen in einer Monolage zu präparieren. Da die Massendichten ebenfalls in andere Kräfte wie die Neutralgasreibung eingehen, besteht eine starke Interdependenz zwischen diesen Größen. Eine korrekte Abbildung der experimentellen binären komplexen Plasmen in Simulationen ist daher nur bei Berücksichtigung dieser Interdependenzen möglich.

Aus diesem Grund wurde ein eigener Simulationscode entwickelt, der neben zwei Partikelsorten mit unterschiedlichen Radien auch eine Größenverteilung der Partikel erlaubt. Der Code trägt den Namen BADCOP-MD (**B**inary **A**nd **D**isperse **C**omplex **P**lasma - **M**olecular **D**ynamics). Die Simulation aktualisiert sowohl die Positionen, als auch Geschwindigkeiten in jedem Zeitschritt für alle drei Dimensionen (3D3V-Code). Die zu aktualisierenden Größen (Positionen, Geschwindigkeiten und Kräfte) sind nicht normiert, sondern werden in SI-Einheiten berechnet. Die Berechnung der Interpartikelkräfte beruht auf dem Simulationscode von JAN SCHABLINSKI [237]. Teile des Codes sind parallelisiert, um auf einem Grafikprozessor mit CUDA² Unterstützung große Systeme ($N \sim 10^4$ Partikel) effizient simulieren zu können.

Der BADCOP-MD Code wurde in drei Teilaspekten dieser Arbeit verwendet. In Abschnitt 4.3, um ein Verständnis für die Mischung und Entmischung während des Präparationsprozesses zu entwickeln, in Abschnitt 3.6 zur Beurteilung der aus der Konfigurationstemperatur erhaltenen Ergebnisse und in Kap. 6, um den Einfluss von Nichtgleichgewichtsprozessen auf die Bestimmung der Entropie in komplexen Plasmen einschätzen zu können.

Lösung der Bewegungsgleichung

Molekulardynamik-Simulationen eignen sich, um die Struktur und Dynamik von Systemen aus N Partikeln in einem gegebenen Potential $\Phi(\mathbf{r})$ zu berechnen. Das Grundprinzip ist wie folgt: Nachdem die initialen Position und Geschwindigkeiten aller Partikel in einer Simulationsbox zufällig gewählt wurden, wird die Bewegungsgleichung

$$m_d \ddot{\mathbf{r}} = -\nabla \Phi(\mathbf{r}) \quad (3.15)$$

²Die Compute Unified Device Architecture (CUDA) von NVIDIA® erlaubt eine Implementierung in diversen Programmiersprachen, um Berechnungen parallelisiert auf den Kernen moderner Grafikprozessoren durchführen zu können [243].

in vorgegebenen Zeitschritten Δt gelöst und abhängig von der verwendeten Integrationsmethode die Positionen und/oder Geschwindigkeiten aktualisiert. Ein klassisches Lösungsverfahren ist der sogenannte VERLET-Algorithmus, der in seiner ursprünglichen Form nur Positionen berechnete [244]. Die Erweiterung um die Geschwindigkeiten von SWOPE *et al.* ist ein weit verbreiteter Standardalgorithmus und wird als VELOCITY-VERLET bezeichnet [245]. Die Berechnung ist äußerst anschaulich, da sie lediglich der gleichförmig beschleunigten Bewegung der klassischen Mechanik entspricht. Die Positionen r und Geschwindigkeiten v des nachfolgenden $(n + 1)$ -ten Zeitschritts berechnen sich aus dem n -ten Zeitschritt nach

$$r_{n+1} = r_n + v_n \Delta t + \frac{1}{2} f_n \Delta t^2 \quad (3.16)$$

$$\text{und } v_{n+1} = v_n + \frac{1}{2} (f_n + f_{n+1}) \Delta t. \quad (3.17)$$

Die normierten Kräfte $f_n = F_n/m_d$ entsprechen den Beschleunigungen und können durch jede konservative Kraft modelliert werden. In jedem Zeitschritt müssen die normierte Kräfte neu aus den Positionen r_n berechnet werden.

In komplexen Plasmen kann das Neutralgas als dämpfende und die geladenen Plasmaspezies als abschirmende Komponente betrachtet werden. Zudem sind die Ladungsträger für die Aufladung der Partikel verantwortlich. Bei konstanten Entladungsbedingungen sind die Partikelladung und Abschirmlänge auf der Zeitskala der Staubpartikeldynamik im Gleichgewicht und gehen als konstante Simulationsparameter in die entsprechenden Ausdrücke für die Kräfte ein. Die Bewegungsgleichung eines beispielhaften j -ten Partikels kann durch

$$m_{d,j} \ddot{\mathbf{r}}_j = \mathbf{F}_j^c + \mathbf{F}_j^{\text{int}} + \mathbf{F}_j^{\text{drag}} + \mathbf{F}_j^{\text{fluct}}, \quad (3.18)$$

beschrieben werden. Hier sind \mathbf{F}_j^c die Rückstellkraft des Einschlusspotentials, $\mathbf{F}_j^{\text{int}}$ die YUKAWA-Wechselwirkungskraft der Partikel untereinander, $\mathbf{F}_j^{\text{drag}}$ die EPSTEIN-Reibungskraft und $\mathbf{F}_j^{\text{fluct}}$ die sogenannte fluktuierende Kraft, die das Wärmebad des Neutralgashintergrundes simuliert und durch die frei einstellbare Temperatur als Thermostat fungiert. Die Ausdrücke der einzelnen Kräfte entsprechen denen aus Abschnitt 2.4. Die fluktuierende Kraft ist über das Fluktations-Dissipationstheorem mit der dissipativen Reibungskraft verknüpft [246]. Aus der Bedingung $\langle F_i^{\text{fluct}}(t), F_k^{\text{fluct}}(t') \rangle = 2\beta m_d k_B T \delta(t - t') \delta_{ik}$ folgt für die fluktuierende Kraft

$$\mathbf{F}_j^{\text{fluct}} = \sqrt{\frac{2\beta_j m_{d,j} k_B T}{\Delta t}} \boldsymbol{\xi}(t). \quad (3.19)$$

Die Größe $\boldsymbol{\xi}(t)$ repräsentiert standardnormalverteilte Zufallszahlen für alle Dimensionen des Systems, die in jedem Zeitschritt neu erzeugt werden. Da das Produkt $\beta m_d \propto a_d^2$ proportional zum Partikelquerschnitt ist, wird die abweichende Reibungskraft zweier Spezies mit verschiedenen Radien durch eine entsprechend höhere fluktuierende Kraft kompensiert. Unabhängig von den individuellen Partikeleigenschaften nehmen alle Spezies in der Simulation immer die Temperatur des Thermostaten an. Um auch hiervon abweichende Szenarien simulieren zu können, kann ein Temperaturverhältnis der beiden Spezies eingestellt werden.

Zur Ermittlung der Grundkonfigurationen finiter binärer Kristalle wird *simulated annealing* verwendet. Dazu wird zu Beginn eine derart hohe Temperatur gewählt, dass das System sich vollständig in der flüssigen Phase befindet. Nach Einstellen eines Gleichgewichtes wird die fluktuierende Kraft, in diesem Fall über die Temperatur, langsam verringert. Typischerweise werden dazu $N_{\text{steps}} > 10^6$ Simulationsschritte verwendet, sodass $\Delta T / \Delta t < 0,1 \text{ K} / \Delta t$ ist. Eine Endtemperatur von $T_{\text{final}} = 300 \text{ K}$ ist niedrig genug, um die Grundkonfiguration zu erreichen.

Mit Einführung der fluktuierenden Kraft ist jedoch die Lösung der Bewegungsgleichung mithilfe des VELOCITY-VERLET-Algorithmus nicht mehr mit der selben Präzision möglich [247]. Bei Gl. (3.18) handelt es sich nun um eine stochastische Differentialgleichung vom Typ einer LANGEVIN-Gleichung. Dies führt zu einem Fehler der Positionen von der Größenordnung $\mathcal{O}(\Delta t)$. Die allgemeine LANGEVIN-Gleichung lässt sich mit Integratoren 2. Ordnung lösen [248, 247]. Für die thermodynamische Untersuchungen dieser Arbeit wurde die Integrationsmethode von GRØNBECH-JENSEN und FARAGO verwendet [247]. Die Aktualisierung der Positionen und Geschwindigkeiten erfolgt nach dem Schema

$$r_{n+1} = r_n + b \Delta t v_n + \frac{b \Delta t^2}{2m_d} f_n + \frac{b \Delta t}{2m_d} \xi_{n+1}, \quad (3.20)$$

$$v_{n+1} = v_n + \frac{\Delta t}{2m_d} [f_n + f_{n+1}] - \beta [r_{n+1} - r_n] + \frac{1}{m_d} \xi_{n+1}, \quad (3.21)$$

$$b = \frac{1}{1 + \frac{\beta \Delta t}{2}}. \quad (3.22)$$

Im Gegensatz zu anderen Integratoren 2. Ordnung hat sich diese Methode als sehr effizient herausgestellt. Stabile Simulationen werden unter der Bedingung $\beta \Delta t < 2$ erreicht. Für eine zusätzliche Einschätzung der gewählten Zeitschritte kann ein Vergleich zu den typischen Zeitskalen der Partikeldynamik gezogen werden. Ein Maß für diese Zeitskala in komplexen Plasmen ist die Staubplasmafrequenz $\omega_{p,d}^2 = Q_d^2 n_d / (\epsilon_0 m_d)$ mit Staubdichte n_d . Für die in dieser Arbeit durchgeführten Simulationen wurde stets ein Zeitschritt von $\Delta t = 10^{-4} \text{ s}$ gewählt und eine Dämpfungsrate von $\beta = 1 \dots 10 \text{ s}$. Für alle Simulationen waren die Bedingungen $\beta \Delta t \ll 2$ und $\Delta t < 5 \times 10^{-4} \omega_{p,d}^{-1}$ erfüllt.

Relation der Partikeleigenschaften

Um die Situation von Partikeln unterschiedlicher Größe in der Randschicht korrekt abzubilden, werden in der Simulation möglichst viele Abhängigkeiten der Partikeleigenschaften berücksichtigt. Alle intrinsischen Parameter der Partikel werden relativ zur Wahl der Eigenschaften von Spezies 1 berechnet. Der Partikelradius von Spezies 1 wurde in allen Simulationsdurchläufen zu $a_1 = 5 \mu\text{m}$ gewählt. Unter Verwendung des Kugelkondensatormodells skaliert die Ladung linear mit dem Partikelradius. Dann ist für ein Ladungsverhältnis von $Q_r = Q_{d,1} / Q_{d,2}$ der Radius der Spezies 2 durch $a_{d,2} = a_{d,1} / Q_r$ bestimmt. Die Ladung der Spezies $\alpha \in \{1, 2\}$ ergibt sich mithilfe von Gl. (2.14) zu $Q_{d,\alpha} = 4\pi\epsilon_0\Phi_{\text{fl}}a_{d,\alpha}$. Für das Floatingpotential wird der OML-Wert für Niedertemperaturplasmen in Argon von $\Phi_{\text{fl}} = -2,41 k_B T_e$ mit $T_e = 3 \text{ eV}$ ver-

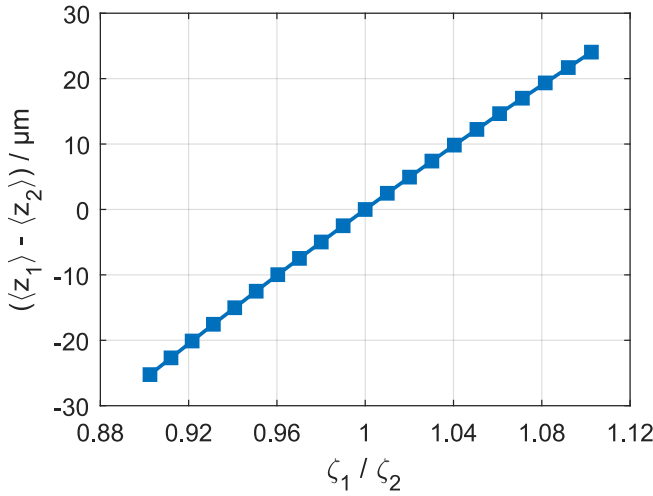


Abbildung 3.7: Die Levitationshöhenunterschiede ($z_1 - z_2$) der Spezies 1 und 2 für eingestellte Verhältnisse der spezifischen Ladungen ζ_1/ζ_2 für einen elektrischen Feldgradienten von $\partial E_z/\partial z \approx 8 \times 10^6 \text{ V/m}^2$. Wenige Prozent Unterschied in den spezifischen Ladungen verursachen Levitationshöhenunterschiede von einigen Partikelradien.

wendet (vgl. Kap. 2.3). Da das OML-Modell nur eine Abschätzung für die maximale negative Ladung liefern kann, werden die verwendeten effektiven Ladungen mit einem Faktor relativ zur OML-Ladung eingestellt, so dass $Q_{\text{eff},\alpha} = Q_{\text{factor}} Q_{d,\alpha}$ und $Q_{\text{factor}} \leq 1$ sind.

Analog zur Ladung wird die Masse der Spezies 2 aus den Eigenschaften der Spezies 1 abgeleitet. Die Massendichte der Spezies wird für alle Simulationen auf den Wert $\rho_{d,1} = 1510 \text{ kg/m}^3$ (MF) gesetzt. Die Massendichte der zweiten Spezies folgt aus der Bedingung für monolagige binäre Mischungen $\rho_{d,2} = \rho_{d,1}(a_{d,1}/a_{d,2})^2$. Die Größen $a_{d,\alpha}$, $\rho_{d,\alpha}$ sowie $Q_{d,\alpha}$ und $m_{d,\alpha} = \frac{4}{3}\pi\rho_{d,\alpha}a_{d,\alpha}^3$ gehen dann in die Ausdrücke aller Kräfte ein. Systeme mit unterschiedlichen spezifischen Ladungen $\zeta_\alpha = Q_{d,\alpha}/m_{d,\alpha}$ werden über einen zusätzlichen Massendichtefaktor $\rho_{d,2} = \rho_{\text{factor}}\rho_{d,1}(a_{d,1}/a_{d,2})^2$ realisiert. Auf diese Weise bleibt das Ladungsverhältnis $Q_{d,1}/Q_{d,2}$ der Spezies trotz unterschiedlicher spezifischer Ladungen erhalten.

Levitation zweier Spezies in der Simulation

Die Levitationshöhe wird aus dem Gleichgewicht von elektrischer Feldkraft in der Schicht $Q_{d,\alpha}E_z$ und der Gravitationskraft $m_{d,\alpha}g$ bestimmt. Wie in Abb. 2.2 skizziert, wird das elektrische Feld durch ein mit abnehmender z -Position linear zunehmendes elektrisches Feld $E_z = -(\partial E/\partial z)z = -(\rho_c/\epsilon_0)z$ modelliert. Dabei markiert der Punkt $z = 0$ die Randschichtkante. Aus Gründen der einfacheren Modellierung wird eine konstante Ladungsdichte ρ_c in der Randschicht angenommen. Typische Werte für verwendete Ladungsdichten sind $\rho_c/\epsilon_0 = 3 \dots 6 \times 10^{14} \text{ m}^{-3}$. Damit ergibt sich für den Gradienten des elektrischen Feldes $\partial E_z/\partial z \approx 8 \times 10^6 \text{ V/m}^2$. Die Gleichgewichtshöhe z_0 der Partikelspezies folgt der Bedingung $Q_{d,\alpha}E_z(z_0) - m_{d,\alpha}g = 0$. Partikelspezies mit unterschiedlichen spezifischen Ladungen $\zeta = Q_{d,\alpha}/m_{d,\alpha}$ levitieren auch in der Simulation in unterschiedlichen Ebenen. In Abb. 3.7 ist der vertikale Abstand ($z_1 - z_2$) der Spezies 1 und 2 in der Simulation als Funktion der relativen spezifischen Ladung ζ_1/ζ_2 dargestellt. Der Abstand stellt sich durch die vorherrschenden vertikalen Kräfte ein. Hier wurde die Varianz der Größenverteilung der Spezies auf Null gesetzt. Für wenige Prozent Unterschied in der spezifischen Ladung zeigen sich Abständen von mehreren Partikeldurchmessern. Höhere Feldgradienten verursachen entsprechend größere vertikale Abstände der Spezies. In Abschnitt 4.3 wird diese Eigenschaft der Simulation ausgenutzt, um

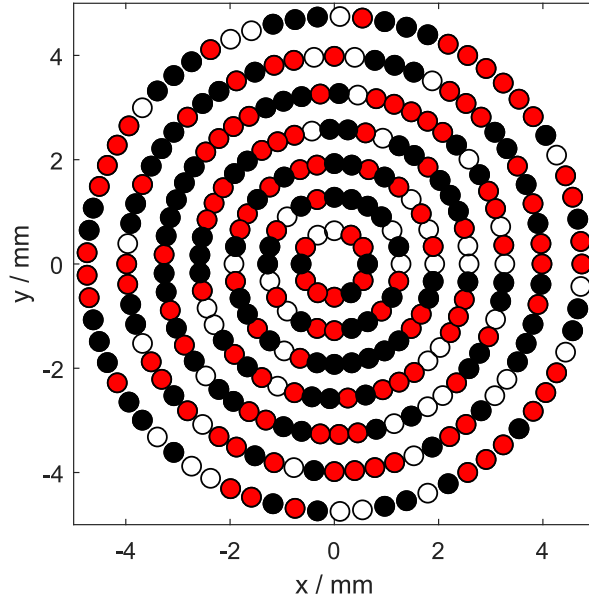


Abbildung 3.8: Veranschaulichung der Initialisierung der Positionen. Es wird ein kreisförmiges Gitter mit den Abmessungen des simulierten Systems erzeugt. Die Anzahl der Gitterplätze ist $\sim 20\%$ größer als die Partikelzahl. Partikel der Spezies 1 (rot) und Spezies 2 (schwarz) werden zufällig auf die Plätze verteilt.

die Strukturierung von Systemen mit abweichenden spezifischen Ladungen zu untersuchen. Die dort durchgeführten Analysen zeigen, dass diese geringen Unterschiede in der idealen Situation der MD-Simulation bereits Auswirkungen auf die Struktur haben.

Initialisierung und Equilibrierung

Zu Beginn der Simulation müssen die Positionen und Geschwindigkeiten der Partikel initialisiert werden. Üblich ist die zufällige Wahl der Positionen aller Partikel im Simulationsvolumen am Anfang eines Simulationsdurchlaufs. Im Falle zweidimensionaler binärer Systeme kann bei dieser Initialisierung und bei bestimmten Parameterkombinationen eine radiale *Pseudoentmischung* auftreten und Studien zur Struktur beeinträchtigen. Auf Grund der unterschiedlichen Rückstellkräfte beider Spezies strömen die Partikel mit größerer Masse zuerst in das Zentrum der Falle.

Um dies zu vermeiden verwendet der BADCOP-MD Code einen anderen Ansatz für die Initialisierung. Es wird zunächst ein kreisförmiges Gitter mit den zu erwartenden Abmessungen der Grundkonfiguration erzeugt. Ein Beispiel ist in Abb. 3.8 dargestellt. Der maximalen Radius des Systems ergibt sich aus der Abschätzung von TOTSUJI *et al.* [143]. Die Gitterkonstante beträgt eine Abschirmlänge. Es werden $\sim 20\%$ mehr Gitterplätze erzeugt, als Partikel in dem simulierten System enthalten sind. Die Partikel beider Spezies werden zu Beginn jeder Simulation zufällig auf diese Gitterplätze verteilt. Die ersten N_{equi} Simulationsschritte dienen der Equilibrierung des Systems. Um die radiale Pseudoentmischung zu unterdrücken, besitzen beide Partikelspezies exakt die gleichen Eigenschaften, nämlich den Mittelwert der individuellen Eigenschaften. Nach der Equilibrierungsphase erhalten alle Partikel ihre individuellen Partikeleigenschaften. Dieses Schema beschleunigt die Initialisierung der Simulation erheblich und stellt eine reproduzierbare Strukturierung in Abhängigkeit aller Simulationsparameter sicher.

3.6 Die Konfigurationstemperatur als Ladungsdiagnostik

Mit der phasenaufgelösten Resonanzmethode aus Abschnitt 3.3 ist eine präzise Messung der spezifischen Ladung einzelner Partikel möglich. Über eine zusätzliche Messung der Ladungsdichte in der Randschicht und der Massendichte [249] kann auf die absolute Partikelladung geschlossen werden. Um allerdings eine direkte Verknüpfung der vorliegenden Ladung mit der Struktur finiter Systeme aus mehreren zehn bis hundert Partikeln herstellen zu können, ist eine Ladungsdiagnostik an Plasmakristallen wertvoll. Neben einer Analyse der Dynamik, etwa mithilfe der Normalmodenanalyse [43], soll hier eine Methode vorgestellt werden, die eine Ladungsbestimmung aus der Anordnung der Partikel erlaubt. Diese Konfigurationstemperatur wurde bereits von HIMPEL *et al.* erfolgreich auf monodisperse komplexe Plasmen angewandt [144, 145].

Die Temperatur eines physikalischen Systems ist eine fundamentale thermodynamische Eigenschaft, die nicht nur Rückschlüsse auf die in dem System enthaltene kinetische Energie erlaubt, sondern über

$$\frac{1}{T} = \frac{\partial S(E)}{\partial E} \quad (3.23)$$

auch direkt mit der Entropie S des Systems verknüpft ist. In Abschnitt 3.4 wurde die Bestimmung der Temperatur aus den Geschwindigkeitsverteilungen beschrieben. Äquivalent kann über $\frac{1}{2}m\langle v^2 \rangle = k_B T$ die Temperatur aus der mittleren kinetischen Energie bestimmt werden. Die Gemeinsamkeit dieser Methoden ist die Verknüpfung der Temperatur mit den dynamischen Eigenschaften des Systems anhand des Erwartungswertes der Geschwindigkeiten. Eine alternative Temperaturdefinition wurde 1997 von BUTLER *et al.*, basierend auf den Vorarbeiten von RUGH vorgeschlagen [250, 251]. Hier wird die Temperatur ausschließlich mit den Positionen der Teilchen in einem gegebenen Potential verknüpft. Für ein beliebiges HAMILTONisches System kann die Temperatur

$$k_B T = \frac{\langle \nabla \mathcal{H}(\mathbf{\Gamma}) \cdot \mathbf{B}(\mathbf{\Gamma}) \rangle}{\langle \nabla \cdot \mathbf{B}(\mathbf{\Gamma}) \rangle} \quad (3.24)$$

definiert werden. Hier sind $\mathcal{H}(\mathbf{\Gamma}) = K(\{p_i\}) + U(\{q_i\})$ die HAMILTON-Funktion des Systems mit der kinetischen Energie $K(\{p_i\})$ und der potentiellen Energie $U(\{q_i\})$. Ferner ist $\mathbf{\Gamma} = \{q_1 \dots q_{3N}, p_1 \dots p_{3N}\}$ der Phasenraum mit den generalisierten Koordinaten q_i und Impulsen p_i . $\mathbf{B}(\mathbf{\Gamma})$ kann jede stetige und differenzierbare Vektorfunktion im Phasenraum sein.

Wählt man $\mathbf{B}(\mathbf{\Gamma}) = -\nabla U(\{q_i\})$, so folgt für den Gradienten der HAMILTON-Funktion

$$\nabla \mathcal{H}(\mathbf{\Gamma}) = \nabla_q (K(\{p_i\}) + U(\{q_i\})) = \nabla_q U(\{q_i\}) \quad (3.25)$$

und schließlich die neue Temperaturdefinition

$$k_B T_{\text{conf}} = \frac{\langle \nabla U(\{q_i\}) \cdot [-\nabla U(\{q_i\})] \rangle}{\langle -\nabla^2 U(\{q_i\}) \rangle} = \frac{\langle \nabla U(\{q_i\}) \cdot \nabla U(\{q_i\}) \rangle}{\langle \nabla^2 U(\{q_i\}) \rangle}, \quad (3.26)$$

die als „configurational temperature“ bezeichnet wird [251, 250]. Im Folgenden wird der deutsche Ausdruck „Konfigurationstemperatur“ verwendet. Das Besondere an Gl. (3.26) ist, dass die Temperatur jetzt nur noch von den generalisierten Koordinaten q_i und nicht mehr von den generalisierten Impulsen p_i der Teilchen abhängt.

Für konservative Kräfte kann der Zusammenhang $\mathbf{F} = -\nabla U$ verwendet werden, um die Gradienten der potentiellen Energie U in Kräfte umzuwandeln. In finiten komplexen Plasmen wirken hauptsächlich zwei konservative Kräfte auf die Partikel: Die Rückstellkraft des harmonischen Einschlusses \mathbf{F}^c und die elektrostatische Wechselwirkungskraft zwischen den Partikeln \mathbf{F}^{int} .

Setzt man für die Gesamtkraft die Komponenten $\mathbf{F} = \mathbf{F}^{\text{int}} + \mathbf{F}^c$ ein, so folgt unter Verwendung von Gl. (3.26)

$$k_B T_{\text{conf}} = \frac{\left\langle \sum_{j=1}^N (\mathbf{F}_j^{\text{int}} + \mathbf{F}_j^c)^2 \right\rangle}{\left\langle - \left[\sum_{j=1}^N (\nabla_j \cdot \mathbf{F}_j^{\text{int}}) - 2Nk \right] \right\rangle}. \quad (3.27)$$

Hier wurde für den harmonischen Einschluss

$$\mathbf{F}_j^c = -m_d \omega_{0xy}^2 \mathbf{q}_j = -k \mathbf{q}_j \quad (3.28)$$

und dessen Divergenz $\nabla \cdot \mathbf{F}_j^c = -dk$ verwendet, wobei d die Anzahl an Dimensionen und k die Steifigkeit der Falle ist. Die Summe über alle Partikel wird durch den Faktor N berücksichtigt. Bei idealen Einschlussbedingungen ist k eine reelle positive Zahl und für alle Partikel gleich.

Für die Berechnung der Konfigurationstemperatur wird die Divergenz der Wechselwirkungskraft benötigt. Die in Kap. 2.4 eingeführte YUKAWA-Wechselwirkungskraft lautet

$$\mathbf{F}_j^{\text{int}} = \sum_{i \neq j}^N \frac{Q_{d,i} Q_{d,j}}{4\pi\epsilon_0} \left(\frac{1}{r_{ij}^2} + \frac{1}{r_{ij}\lambda_s} \right) \exp\left(-\frac{r_{ij}}{\lambda_s}\right) \mathbf{e}_{ij}, \quad (3.29)$$

wobei $r_{ij} = \sqrt{(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2}$ den Abstand zwischen einem Partikelpaar und \mathbf{e}_{ij} den Einheitsvektor der Kraftrichtung bezeichnet. Eine äquivalente Schreibweise unter Verwendung der generalisierten Koordinaten lautet

$$\mathbf{F}_j^{\text{int}} = \sum_{i \neq j}^N \frac{Q_{d,i} Q_{d,j}}{4\pi\epsilon_0} \left(\frac{1}{r_{ij}^3} + \frac{1}{r_{ij}^2 \lambda_s} \right) \exp\left(-\frac{r_{ij}}{\lambda_s}\right) [\mathbf{q}_i - \mathbf{q}_j] \quad (3.30)$$

und entspricht der Verwendung in der Literatur [144]. Die Divergenz der Wechselwirkungskraft ist

$$\nabla_j \cdot \mathbf{F}_j^{\text{int}} = \frac{\partial F_{j,x}^{\text{int}}}{\partial x_j} + \frac{\partial F_{j,y}^{\text{int}}}{\partial y_j}. \quad (3.31)$$

Da die Summanden sich analog berechnen, wird hier nur der Fall der x -Richtung aufgeführt. Es ist

$$\frac{\partial F_{j,x}^{\text{int}}}{\partial x_j} = \frac{Q_{d,i} Q_{d,j}}{4\pi\epsilon_0} \exp\left(-\frac{r_{ij}}{\lambda_s}\right) \left[\frac{3\Delta x^2}{r_{ij}^5} + \frac{3\Delta x^2}{r_{ij}^4 \lambda_s} + \frac{\Delta x^2}{r_{ij}^3 \lambda_s^2} - \frac{1}{r_{ij}^3} - \frac{1}{r_{ij}^2 \lambda_s} \right], \quad (3.32)$$

wobei $\Delta x = x_i - x_j$ ist.

Für die gesamte Divergenz $\nabla_j \cdot \mathbf{F}_j^{\text{el}}$ ergibt sich unter Verwendung von $\Delta x^2 + \Delta y^2 = r_{ij}^2$ der Ausdruck

$$\nabla_j \cdot \mathbf{F}_j^{\text{int}} = \frac{\partial F_{j,x}^{\text{int}}}{\partial x_j} + \frac{\partial F_{j,y}^{\text{int}}}{\partial y_j} = \frac{Q_{d,i} Q_{d,j}}{4\pi\epsilon_0} \exp\left(-\frac{r_{ij}}{\lambda_s}\right) \left[\frac{1}{r_{ij}^3} + \frac{1}{r_{ij}^2 \lambda_s} + \frac{1}{r_{ij} \lambda_s^2} \right]. \quad (3.33)$$

Mit den Gleichungen (3.28), (3.30) und (3.33) kann die Konfigurationstemperatur analytisch aus den Positionen der Partikel eines Systems mit gegebener Partikelladung Q_d , Abschirmlänge λ_s und Fallensteifigkeit k berechnet werden. In monodispersen Systemen kann eine mittlere Partikelladung Q_d mit einer zur Größenverteilung der Partikelsorte proportionalen Schwankung angenommen werden. In binären Systemen hingegen muss jedem Partikel seine Ladung zugeordnet werden. Anschaulich kann die Konfigurationstemperatur als Ensemblemittelwert der Auslenkung aller Partikel in ihrer Potentialmulde verstanden werden.

Sind die Kräfte bekannt, lässt sich die Konfigurationstemperatur T_{conf} berechnen. Sofern nur konservative Kräfte auf die Partikel wirken, entspricht diese exakt der kinetischen Temperatur des Systems $T_{\text{kin}} = T_{\text{conf}}$. Andersherum kann bei Kenntnis der kinetischen Temperatur auf die Kräfte in dem System geschlossen werden. In komplexen Plasmen lässt sich die kinetische Temperatur aus den Trajektorien der Partikel direkt bestimmen. Mithilfe des vorgestellten Formalismus kann die Gleichung

$$k_B T_{\text{kin}} = k_B T_{\text{conf}} = \frac{\left\langle \sum_{j=1}^N (\mathbf{F}_j^{\text{int}} + \mathbf{F}_j^{\text{c}})^2 \right\rangle}{\left\langle - \left[\sum_{j=1}^N (\nabla_j \cdot \mathbf{F}_j^{\text{int}}) - 2Nk \right] \right\rangle}. \quad (3.34)$$

bezüglich der Unbekannten gelöst und somit die Gesamtkraft bestimmt werden. Die verbleibenden freien Parameter sind die mittlere Partikelladung Q_d , die Abschirmlänge λ_s und Steifigkeit der harmonischen Falle k . Allerdings steht den drei Unbekannten nur eine Gleichung gegenüber, so dass keine eindeutige Lösung existiert.

Iterative Ladungsbestimmung

Da die Interpartikelabstände und damit auch die Konfiguration eine Funktion der Partikelladungen, -massen, der Einschlussstärke und der Abschirmlänge sind, ist ohne weitere Kenntnisse keine eindeutige Lösung des Problems möglich. Mit einem iterativen Verfahren kann jedoch die Anzahl der freien Parameter erheblich reduziert werden. Dieses Verfahren wurde bereits von HIMPEL *et al.* erfolgreich eingesetzt [144]. Für die Methode wird das Residuum

$$R(Q_d, \lambda_s) = \sqrt{(T_{\text{kin}} - T_{\text{conf}}(Q_d, \lambda_s, k))^2} \quad (3.35)$$

für einen gewählten Parameterraum $\{Q_d, \lambda_s\}$ berechnet. Hierzu ist eine konsistente Bestimmung der Fallensteifigkeit k in Abhängigkeit der gewählten Ladung und Abschirmlänge notwendig, die im Folgenden skizziert wird.

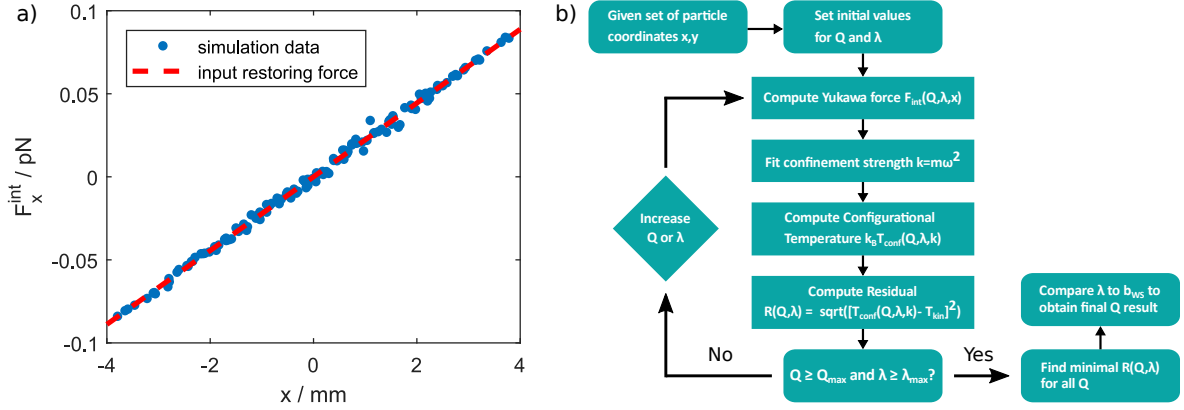


Abbildung 3.9: Verfahren zur Bestimmung der Ladung aus der Konfigurationstemperatur. a) Interpartikelkraft als Funktion der x -Koordinate. Im harmonischen Einschlusspotential ist die Steigung gerade $k_x = m\omega_{0xy}^2$. b) Iterativer Algorithmus zur konsistenten Berücksichtigung der Fallensteifigkeit bei der Berechnung des Residuums $R(Q, \lambda)$.

Im Gleichgewicht verschwinden im zeitlichen Mittel die Kräfte auf die Partikel, so dass $\langle \mathbf{F} \rangle_t = \langle \mathbf{F}^c + \mathbf{F}^{\text{int}} \rangle_t = 0$ ist. Da sich die Partikel näherungsweise in einer harmonischen Falle befinden, skaliert die Rückstellkraft linear mit dem Abstand zur Fallenmitte. Es ist daher von Vorteil, für einen gegebenen Parametersatz (Q_d, λ_s) die Interpartikelkraft F_x^{int} als Funktion der x -Koordinate zu berechnen und so die lineare Rückstellkraft zu erhalten. Die resultierende Kraft entspricht der negativen Rückstellkraft der Falle $-F_x^c$ und die Steigung ist deren Steifigkeit $k = m_d \omega_{0xy}^2$. Bei asymmetrischen Fallen kann dieses Verfahren auf beliebige Raumrichtungen angewandt werden. Dieser Sachverhalt lässt sich an Simulationsdaten mit idealer harmonischer Falle verifizieren, da hier alle Parameter exakt bekannt sind. Für den Test der Methode kam der in Abschnitt 3.5 vorgestellte BADCOP-MD-Code zum Einsatz. In Abb. 3.9 a) sind die in der Simulation unter Verwendung der eingestellten Parameter Q_d und λ_s berechneten Interpartikelkräfte F_x^{int} als Funktion der x -Koordinate gezeigt (blaue Punkte). Bei der rot gestrichelten Linie handelt es sich nicht um eine Anpassung, sondern sie entspricht der Rückstellkraft mit der eingestellten Fallensteifigkeit $k_{\text{sim}} = 2,2 \times 10^{-11} \text{ kg s}^{-2}$. Für gegebene Ladungen und Abschirmmlängen lässt sich die Steifigkeit k auf diese Weise exakt bestimmen.

Zur Berechnung des Residuums $R(Q_d, \lambda_s)$ wird das iterative Verfahren aus Abb. 3.9 b) verwendet. Gegeben sei ein Satz an Partikelkoordinaten $\{x_1 \dots x_N, y_1 \dots y_N\}$. Zuerst wird ein realistisch zu erwartender Parameterraum $\{Q_d, \lambda_s\}$ mit $Q_d/e_0 \in [10^3, 10^4]$ und $\lambda_s/\text{mm} \in [10^{-1}, 10^0]$ gewählt. Nach Wahl des ersten Parametersatzes wird die Restkraftkomponente berechnet und somit k bestimmt. Mit dem vollständigen Satz an Parametern Q_d, k und λ_s kann die Konfigurationstemperatur nach Gl. (3.26) berechnet und mit der kinetischen Temperatur T_{kin} verglichen werden. Das Ergebnis ist eine Residuenkarte für den gewählten Parameterraum, die die Übereinstimmung zwischen kinetischer und Konfigurationstemperatur angibt. Beispiele solcher Karten sind in Abb. 3.10 anhand von monodispersen Simulationsdaten veranschaulicht. Die Konfigurationstemperatur wurde lediglich aus einem einzelnen Satz an Positionen bestimmt.

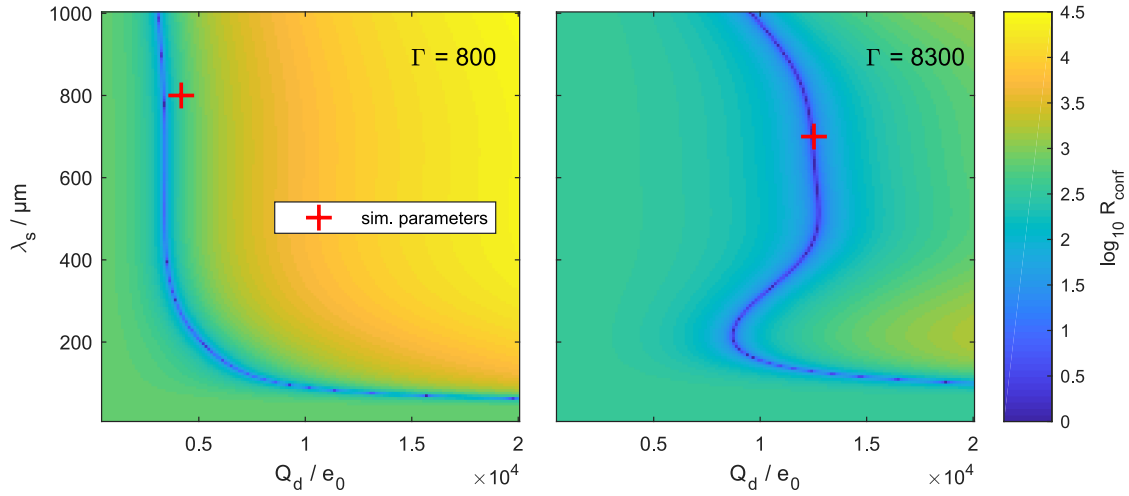


Abbildung 3.10: Residuenkarten für die Anpassung der Konfigurationstemperatur an die kinetische Temperatur für einen Fall moderater Kopplung mit $\Gamma = 800$ (links) und hoher Kopplung mit $\Gamma = 8300$ (rechts). Die blaue Kurve $\lambda_s(Q_d)$ entspricht der Gleichheit von T_{kin} und T_{conf} . Das rote Kreuz markiert die verwendeten Simulationsparameter. Bei $\Gamma = 800$ folgt der Lösungsmenge einem Verlauf $\lambda_s(Q_d) \sim 1/Q_d$. Für hohe Γ zeigt der Verlauf eindeutige Charakteristika.

Gezeigt sind die Residuenkarten für einen Fall moderater Kopplung ($\Gamma = 800$) und einen Fall sehr starker Kopplung ($\Gamma = 8300$). Zur Berechnung des Kopplungsparameters wurde das Modell von VAULINA *et al.* verwendet [252].

Durch Gleichsetzen der kinetischen und Konfigurationstemperatur erhält man eine Lösungsmenge aus Wertepaaren $\lambda_s(Q_d)$. Die tatsächliche Lösung kann alle Wertepaare auf dieser Kurve annehmen. Im linken Bild zeigt die Lösungskurve näherungsweise einen Verlauf der Form $\lambda_s(Q_d) \propto 1/Q_d$. HIMPEL *et al.* haben bereits gezeigt, dass die Lösung stets auf der steil abfallenden Flanke liegt [144]. Im Fall moderater Kopplung hängt die Ladungsmessung somit nur schwach von der Abschirmlänge ab. Im Gegensatz dazu ist eine präzise Messung der Abschirmlänge mit dieser Methode in diesem Regime nicht möglich.

Für den rechten Fall zeigt sich ein komplexeres Bild. Abhängig von der Ladung und Abschirmlänge zeigt der Verlauf von $\lambda_s(Q_d)$ eindeutige Charakteristika, mit denen eine eindeutige Bestimmung eines Parametersatzes (Q_d, λ_s) möglich sein sollte. Derart starke Kopplungen sind im Experiment nur bei hohen Neutralgasdrücken erreichbar. Damit scheidet eine Nutzung der Methode als komplementäre Diagnostik in dynamischen und auch strukturellen Untersuchungen in diesem Regime aus. Die eindeutigen Charakteristika von $\lambda_s(Q_d)$ können daher in der Regel nicht für eine Anpassung an experimentelle Daten herangezogen werden.

Die Residuenkarten aus Abb. 3.10 sind für einen einzelnen Satz an Positionen berechnet worden. Ebenso wie die kinetische Temperatur fluktuiert die Konfigurationstemperatur auf der Zeitskala der Partikeldynamik. Eine robuste Ladungsdiagnostik erfordert die Auswertung der Positionen an mehreren Zeitpunkten und über einen Zeitraum von wenigen Sekunden, um den Erwartungswert messen zu können. Im Fall moderater Kopplung ($\Gamma < 1000$) kann die Partikelladung mit einer Unsicherheit von $\Delta Q_d/Q_d = -15\%$ bestimmt werden, wie ein Test an Simulationsdaten zeigt. Das Vorzeichen soll hervorheben, dass in diesem Regime die Ladung in der Regel unterschätzt wird. Im Vergleich zu anderen Methoden zur Bestimmung

der Partikelladung (vgl. Kap. 2.3) erlaubt die Konfigurationstemperatur eine Ladungsmessung mit überragender Präzision. In Kap. 4.4 wird die Methode auf binäre Systeme erweitert, um das Ladungsverhältnis zweier Partikelspezies aus der Konfiguration zu bestimmen.

4 | Struktur binärer komplexer Plasmen

Erste Experimente an binären Mischungen in komplexen Plasmen wurden in Schwerelosigkeit im Rahmen von Parabelflügen durchgeführt [73]. Das Verschwinden der Gravitationskraft führt zu einer Verteilung der Staubpartikel im gesamten Plasmavolumen. Bei Injektion einer zweiten Spezies zeigt sich eine interessante Dynamik. Auf Grund der vorherrschenden, größenabhängigen Kräfte penetrieren kleinere Partikel eine bestehende Wolke aus größeren Partikeln auf ihrem Weg in das Zentrum der Entladung, wo sie eine Gleichgewichtsposition einnehmen [74]. Dieser Prozess macht binäre komplexe Plasmen in Schwerelosigkeit zu einem idealen Modellsystem um Phänomene wie die sogenannte Spurbildung (*engl.* lane formation) näher zu untersuchen [77, 253]. Allerdings entmischen sich die Systeme unter diesen Bedingungen rasch und bilden zudem eine scharfe Phasengrenze aus. Eine Wechselwirkung der unterschiedlich stark geladenen Partikel findet auf Grund der Abschirmung nur an dieser Phasengrenze statt. Ein ideales binäres Modellsystem hingegen gewährt zusätzlich einen Zugang zu der gemischten Phase. Nur dann können die Auswirkungen der Wechselwirkung beider Spezies auf das Gesamtsystem beobachtet werden. Erste Experimente an zweidimensionalen komplexen Plasmen zeigten, dass diese ein guter Kandidat für die Realisierung von durchmischten binären Systemen sein sollten [83].

Die Entmischung dreidimensionaler Systeme ist eine direkte Folge der modifizierten Kräftebilanz in binären Mischungen. Der Übergang zu zweidimensionalen binären Systemen folgt der Argumentation, dass eine Reduktion der Komplexität dieser Kräftebilanz entscheidend für die Präparation durchmischter binärer Systeme sein sollte. Unter Schwerelosigkeit dominiert die wesentlich komplexer zu modellierende Ionenwindkraft gegenüber der Schwerkraft und es bilden sich dreidimensionale (ellipsoide) Strukturen aus, die keine einfache Symmetrie besitzen. Zweidimensionale Systeme lassen sich unter normalen Laborbedingungen in der Randschicht des Plasmas einfangen. Für die mikrometergroßen Partikel dieser Systeme ist die Ionenwindkraft meist vernachlässigbar (vgl. Kap. 2.5), so dass in erster Näherung für zwei Partikelspezies lediglich die spezifischen Ladungen $\zeta = Q_d/m_d$ entscheidend sind.

In diesem Kapitel wird der Einschluss binärer Systeme in der Plasmarandschicht unter dem Einfluss aller vorherrschenden Prozesse näher betrachtet. Messungen der spezifischen Ladung der Partikelspezies mithilfe der phasenaufgelösten Resonanzmethode stellten die Grundlage für spätere Experimente dar. Das Mischverhalten (quasi-)zweidimensionaler binärer Mischungen wird anhand einer Studie mithilfe des in Abschnitt 3.5 vorgestellten Simulationscodes

nachvollzogen. Daraufgehend werden in diesem Kapitel die Konfigurationstemperatur als Maß für das Ladungsverhältnis verwendet und erste Experimente in binären Mischungen vorgestellt. Aus diesen Informationen kann ein allgemeingültiges Schema für die Präparation zweidimensionaler binärer Mischungen aufgestellt werden.

4.1 Reale binäre Systeme in der Plasmarandschicht

Staubpartikel in der Natur sowie kommerziell erworbene Forschungspartikel weisen stets eine Größenverteilung auf. Da die Ladung und Masse Funktionen des Partikelradius sind, folgen die spezifischen Ladungen der Partikel dieser Verteilung. Auf Grund der Levitationsbedingung $Q_d(a_d)E_z = m_d(a_d)g$ in der Randschicht zeigen bereits monodisperse Systeme eine endliche Ausdehnung senkrecht zur Kristallebene. Unter realen Bedingungen sind diese Systeme nie perfekt zweidimensional, so dass eine separate Betrachtung der vertikalen Struktur (senkrecht zu Kristallebene) und horizontalen Struktur (innerhalb der Kristallebene) sinnvoll ist. Zwei Partikelspezies mit leicht unterschiedlichen spezifischen Ladungen bilden sogenannte quasi-zweidimensionale (mehrlagige) Systeme. Durch die starke Wechselwirkung der unteren Lage mit dem Ion Wake der oberen Lage wird die Dynamik der Systeme stark beeinflusst [254]. Dies kann einen zusätzlichen Heizprozess darstellen [255, 175] oder direkt die Wellenausbreitung in diesen Systemen beeinflussen [87]. Im Allgemeinen überlagern derartige Prozesse die fundamentalen Eigenschaften der Systeme, sodass monolagige binäre Mischungen für Experimente vorzuziehen sind. Um eine Abgrenzung von den quasi-zweidimensionalen Systemen zu formulieren, ist ein Vergleich mit den Eigenschaften zweidimensionaler monodisperser Systeme sinnvoll. Daraus folgernd können Kriterien für zweidimensionale binäre Mischungen im Experiment aufgestellt werden. Die wichtigsten Kriterien lauten [83]:

1. Die Unterschiede in der Levitationshöhe zweier Spezies müssen mindestens eine Größenordnung kleiner als der mittlere horizontale Interpartikelabstand sein.
2. Die Unterschiede in den Radien der Spezies müssen die Standardabweichungen der Partikelsorten um mindestens eine Größenordnung übersteigen.

Die erste Forderung sorgt dafür, dass die Wechselwirkung der Partikel innerhalb der Kristallebene dominant gegenüber der Wechselwirkung mit dem Ion Wake anderer Partikel ist. Der zweite Punkt stellt sicher, dass sich die Eigenschaften der Spezies ausreichend unterscheiden, um Effekte binärer Mischungen beobachten zu können.

Um zwei Partikelspezies unterschiedlicher Radien und Ladungen in einer Monolage einzufangen, muss die Bedingung $a_1^2 \rho_1 = a_2^2 \rho_2$ erfüllt sein. Die Kombination zweier entsprechender kommerziell bezogener Partikelsorten ist aus zwei Gründen nur bedingt möglich. Zum einen deuten Vermessungen der Partikelproben mit einem Tunnelelektronenmikroskop [71] und in Lichtstreuexperimenten [206, 207, 256] darauf hin, dass Abweichungen zwischen der angegebenen mittleren Größe und der tatsächlichen Größe bestehen können. Zum anderen ist für die meisten Materialien die Partikelgröße im Plasma [82, 249] und sogar im Vakuum [257] nicht konstant. Verschiedene Experimente ergaben, dass die spezifische Ladung der Partikel auf Grund verschiedener Prozesse zu- oder abnehmen kann, und dass diese Prozesse

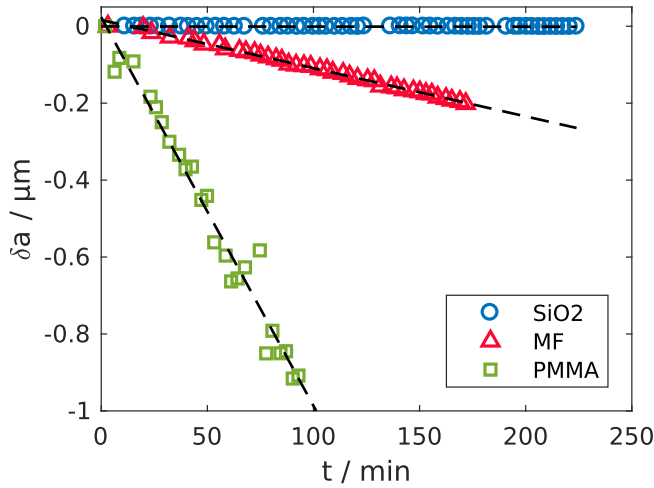


Abbildung 4.1: Größenänderung verschiedener Partikelmaterialien im Plasma. Die Partikelradien wurden in situ mit einer streu- und polarisationswinkel-aufgelösten Lichtstreuungsdagnostik in Kiel gemessen. Da die Partikel unterschiedliche initiale Radien hatten, wurde die absolute Radiusänderung in Bezug auf den initialen Partikelradius $\delta a = a_d(t) - a_d(t_0)$ aufgetragen. Während SiO_2 praktisch keine Größenänderung aufweist, zeigen MF und PMMA moderate bis hohe Ätzzraten. Abgedruckt aus [Kohlmann *et al.*, Phys. Plasmas **26**, 053701 (2019)] mit Genehmigung von AIP Publishing [207].

auf unterschiedlichen Zeitskalen ablaufen. So zeigen Messungen der Eigenfrequenz mit der phasenaufgelösten Resonanzmethode eine Abnahme der Masse auf kurzen Zeitskalen, die durch die Evaporation von Wasser erklärt werden kann [82]. Auf langen Zeitskalen trat in diesen Experimenten zudem eine Massenzunahme auf, die durch Sputtern des verwendeten Elektrodenmaterials erklärt wurde. Massenspektrometrische Untersuchungen bestätigen die Evaporation von Wasser nach dem Einbringen der Staubpartikel in das Plasma [256].

Neuere Messungen der Partikelradien mittels im Rahmen dieser Arbeit mitentwickelter polarisations- und winkelaufgelöster Lichtstreuexperimente zeigen die Größenänderung verschiedener Partikelmaterialien mit beeindruckender Auflösung [207]. Da hier ausschließlich der Partikelradius vermessen wird, ist keine direkte Aussage über eine Veränderung anderer Partikeleigenschaften, wie der Dichte oder der Porösität, möglich. In Abb. 4.1 ist die absolute Größenänderung relativ zur Anfangsgröße $\delta a = a_d(t) - a_d(t_0)$ über der Zeit aufgetragen. Für alle Partikelarten wurde das Experiment bei $P_{\text{rf}} = 12 \text{ W}$ und $p = 9 \text{ Pa}$ betrieben. Die SiO_2 -Partikel weisen über mehrere Stunden im Plasma keine nennenswerte Größenänderung auf, während MF und PMMA eine endliche Ätzzrate¹ zeigen. Die Partikelradien zeigen eine lineare Abnahme (gestrichelte Linien), so dass eine konstante Ätzzrate angenommen werden kann. Für die MF-Partikel ist $\Delta a_{d,\text{MF}}/\Delta t = -1,25 \text{ nm/min}$ und für PMMA $\Delta a_{d,\text{PMMA}}/\Delta t = -11,1 \text{ nm/min}$. Der materialabhängige Ätzprozess der Partikel im Plasma kann ausgenutzt werden, um die Lagen zweier Partikelspezies anzunähern, wie es ähnlich bereits von JUNG *et al.* für zwei vertikal angeordnete Partikel zur Vermessung des Ion Wakes angewandt wurde [172].

¹Der Begriff „Ätzen“ fasst hier mehrere Prozesse zusammen, deren exakte Beiträge zum beobachteten Phänomen nicht genauer bekannt sind. Mit hoher Wahrscheinlichkeit treten sowohl chemisches Ätzen, beispielsweise durch Sauerstoffspezies in der Gasphase oder Sputtern, das Abtragen von Partikelmaterial durch Ionenbombardement, auf.

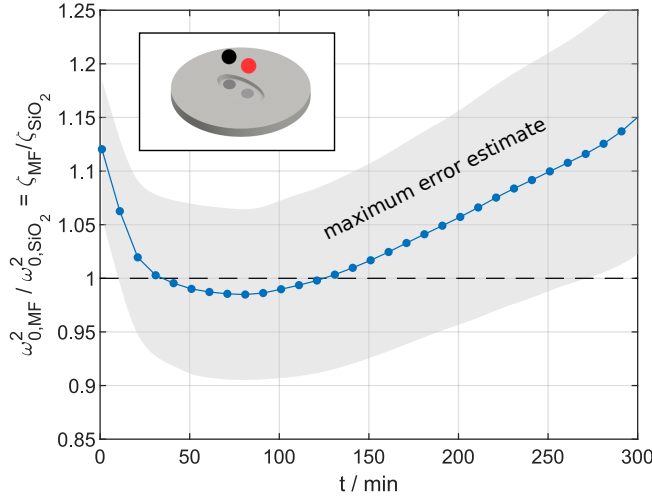


Abbildung 4.2: Verhältnis der spezifischen Ladungen $\omega_{0,MF}^2 / \omega_{0,SiO_2}^2 = \zeta_{MF} / \zeta_{SiO_2}$ als Funktion der Plasmaexpositionszeit t . Der Verlauf ist über mehrere Messungen mit jeweils neuen Partikelpaaren gemittelt. Es lässt sich ein Zeitraum mit $0,98 < \omega_{0,MF}^2 / \omega_{0,SiO_2}^2 \leq 1$ und kleiner Änderungsrate finden. Der grau schattierte Bereich ist die Maximalfehlerabschätzung. Eingefügt ist zudem ein Bild der ellipsenförmigen Vertiefung für den Einfang eines Partikelpaares.

4.2 Vertikale Kräftebilanz

Eine hochpräzise Vermessung der spezifischen Ladung ist mit der in Kap. 3.3 beschriebenen phasenaufgelösten Resonanzmethode möglich. Diese Messungen sind in einer vorangegangenen Masterarbeit durchgeführt worden und lieferten erste Erkenntnisse über die Präparationzeit und Zeitspanne, in der das System als zweidimensional angesehen werden kann [83]. Die Vermessung der spezifischen Ladung der beiden Partikelsorten wurde wie folgt durchgeführt. Es wurden Paare, bestehend aus jeweils einem Partikel beider Spezies, eingefangen und zur Oszillation in der Randschicht angeregt. Die Eigenfrequenz² ω_0 beider Partikel wurde simultan mit der phasenaufgelösten Resonanzmethode vermessen. Dafür wurde der Aufbau entsprechend Kap. 3.3 modifiziert und eine Elektrode mit elliptischer Vertiefung verwendet (s. Ausschnitt in Abb. 4.2). Der asymmetrische Einschluss unterbindet die Rotation des Zweipartikelsystems um dessen Schwerpunkt. So sind eine eindeutige Zuordnung und kontinuierliche Aufnahme der Partikel gewährleistet. Die Messung der Eigenfrequenz ω_0 gibt ohne Kenntnis der Ladungsdichte in Plasma am Ort der Partikel keinen Aufschluss über die spezifische Ladung (vgl. mit Gl. (3.4)). Da die Partikel sich jedoch nur in einem horizontalen Abstand von näherungsweise einer Abschirmlänge und einem wesentlich geringeren vertikalen Abstand befinden, kann die Ladungsdichte für beide Partikel als gleich betrachtet werden. Dann bewirkt die Verhältnisbildung der Eigenfrequenzen eine Eliminierung der Ladungsdichte und drastische Vereinfachung des Problems. Es ist

$$\frac{\omega_{0,MF}^2}{\omega_{0,SiO_2}^2} = \frac{\frac{|Q_{d,MF}|}{m_{d,MF}}}{\frac{|Q_{d,SiO_2}|}{m_{d,SiO_2}}} = \frac{\zeta_{MF}}{\zeta_{SiO_2}} \quad (4.1)$$

und somit liefert einem das quadrierte Verhältnis der Eigenfrequenzen exakt das Verhältnis der spezifischen Ladungen $\zeta_{MF} / \zeta_{SiO_2}$. Für $\omega_{0,MF}^2 / \omega_{0,SiO_2}^2 = 1$ sind die spezifischen Ladungen offensichtlich identisch und die Partikel levitieren auf exakt der gleichen Höhe. In Abb. 4.2

²In diesem Abschnitt wird die vertikale Einschlussstärke ω_{0z} aufgrund zusätzlicher Indizes nur mit ω_0 bezeichnet.

ist der Verlauf dieser Größe als Funktion der Präparationszeit dargestellt. Die blaue Kurve stellt den mittleren Verlauf mehrerer Messungen bei gleichen externen Parametern der Plasmaentladung dar. Der grau schattierte Bereich markiert den Größtfehlerschlauch. Für verschiedene Partikelpaare verschieben sich die Einzelmessungen lediglich um $\pm 0,08$ auf der y -Achse. Bei anderen externen Parametern (Argongasdruck oder HF-Leistung) wird die gemittelte Kurve entlang der Zeitachse gestreckt oder gestaucht. Der Verlauf erscheint zunächst sehr komplex: $\zeta_{\text{MF}}/\zeta_{\text{SiO}_2}$ fällt zunächst steil ab, wird nahezu konstant und steigt für lange Zeitskalen linear an. Die Ursache hierfür ist, dass hier mehrere Prozesse (Evaporation von Wasser bei beiden Spezies, Ätzen von MF) auf unterschiedlichen Zeitskalen stattfinden [82]. Grundsätzlich zeigen die Messungen, dass die mittleren spezifischen Ladungen bereits bis auf wenige Prozent übereinstimmen. Diese ersten hochpräzisen Messungen deuten an, dass es mit der beschriebenen Methode möglich ist, zwei Partikelspezies unterschiedlicher Größe und Ladung in einer Monolage einzufangen. Im folgenden Abschnitt werden die Auswirkungen dieses Prozesses auf die räumliche Verteilung der beiden Partikelspezies in quasi-zweidimensionalen Plasmakristallen mithilfe numerischer Simulationen untersucht.

4.3 Mischung und Entmischung finiter Systeme

Ob zwei Stoffe sich mischen hängt, neben deren Eigenschaften, stark von den äußeren Kräften ab. Das prominenteste Beispiel für eine selbstablaufende Entmischung sind Öl und Wasser. Für die polaren Wassermoleküle ist es energetisch günstiger, sich mit ebenfalls polaren Molekülen zu umgeben. Das Öl ist allerdings unpolar. Im Schwerfeld der Erde kommen zudem die unterschiedlichen Dichten zum Tragen. Da Öl eine geringere Dichte als Wasser hat, schwimmt es oben und bildet einen Ölfilm auf der Wasseroberfläche.

Ein fundamentaler, von der Polarität der Teilchen unabhängiger Entmischungsprozess in Vielteilchensystemen ist die Spinodale Dekomposition (*engl.* spinodal decomposition). Diese tritt ein, wenn ein Stoff oder Stoffgemisch im Phasendiagramm die Spinodale überschreiten bzw. sich dem kritischen Punkt nähert [258]. Binäre Fluide entmischen sich an diesem Punkt in zwei getrennte Phasen, während Systeme aus einer einzelnen chemischen Komponente sich in eine flüssige und gasartige Phase auftrennen [259, 260]. Die Domänen einzelner Phasen wachsen auf zwei Zeitskalen, jeweils einem Potenzgesetz folgend [261, 262]. Im Schwerfeld der Erde überlagern jedoch Konvektion und Sedimentation diesen Prozess, so dass entweder Mischungen gleicher Dichte verwendet oder Experimente mit hohem Aufwand in Schwerelosigkeit z. B. auf der ISS durchgeführt werden müssen [263]. Wie bereits in der Einleitung dieses Kapitels erwähnt, zeigen binäre Mischungen unter Schwerelosigkeit in den meisten Fällen eine instantane Entmischung [76]. Versuche die Entmischung über eine Spinodale Dekomposition zu erklären [264], wurden durch Experimente mit sehr geringen Größenunterschieden der Spezies widerlegt [75]. Stattdessen zeigt sich eine gute Übereinstimmung mit einer Modellierung der herrschenden Kräfte, die diese „uphill diffusion“ verursachen [265]. In diesem Abschnitt soll die (Ent-)mischung in zweidimensionalen finiten Systemen genauer untersucht werden.

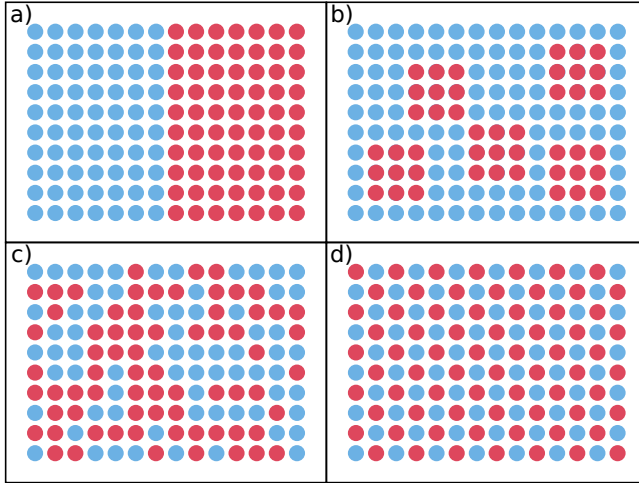


Abbildung 4.3: Skizze verschiedener Entmischungstypen binärer zweidimensionaler Systeme. a) Vollständige Entmischung, b) Domänenbildung, c) Zufällige Mischung, d) Geordnete Mischung mit hoher Periodizität.

In zweidimensionalen Systemen gibt es verschiedene Formen der Mischung und Entmischung. Diese sind in Abb. 4.3 als schematische Skizzen zusammengefasst. Es können vollständig separierte Phasen (a), Domänen (b) und homogene, jedoch stochastische Durchmischung (c), sowie eine Mischung mit hoher Periodizität (d) auftreten. Von a) nach d) nimmt die effektive Grenzfläche an der beide Spezies miteinander wechselwirken zu. Die in d) hinzukommende Periodizität hat zudem einen starken Einfluss auf kollektive Phänomene in diesem System.

Gleichnamig geladene Partikel in einer harmonischen Falle erfahren zum einen die Abstoßung durch andere Partikel und zum anderen die radiale Rückstellkraft der Falle. MD-Simulationen zu zweidimensionalen COULOMB- und YUKAWA-Clustern zeigen, dass sich, unabhängig von der exakten Fallengeometrie, mehrere Spezies mit unterschiedlichen spezifischen Ladungen radial in der Falle sortieren [266, 81]. Partikel mit hoher spezifischer Ladung nehmen einen größeren Abstand zum Fallenzentrum ein, als Partikel mit niedriger spezifischer Ladung. Die Arbeiten zeigen, dass bereits geringe Unterschiede in der spezifischen Ladung einen Einfluss auf die Struktur binärer Systeme haben können. Dies folgt der Minimierung der gesamten potentiellen Energie

$$U = \omega_{0xy}^2 \sum_j m_{d,j} r_j^2 + \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \sum_j \sum_{i \neq j} \frac{Q_{d,i} Q_{d,j}}{r_{ij}} \exp\left(-\frac{r_{ij}}{\lambda_s}\right) \quad (4.2)$$

mit $r_j = \sqrt{x_j^2 + y_j^2}$ und $r_{kj} = |r_k - r_j|$. Dabei wird U prinzipiell minimal, wenn Partikel mit hoher Masse im Zentrum sitzen und Partikel mit hoher Interpartikelenergie (hohe Ladung) möglichst große Abstände einnehmen. In der Realität ist der genaue Zusammenhang jedoch komplizierter. Die Kombination einer abgeschirmten Wechselwirkung und einer linearen Rückstellkraft ruft einen Dichtegradienten in diesen System hervor [106], da die Wechselwirkung vornehmlich mit den nächsten Nachbarn stattfindet und so die Druckwirkung auf Partikel im Zentrum größer ist, als bei einer reinen COULOMB-Wechselwirkung. In der Folge nehmen die Interpartikelabstände entlang der radialen Koordinate zu. Der funktionale Zusammenhang ist dabei hoch nicht-linear, lässt sich aber prinzipiell aus der Balancierung des elektrostatischen Drucks und der Rückstellkraft modellieren [168]. Über die Einschlussstärke ω_{0xy} und die Abschirmlänge λ_s können die Beiträge der elektrostatischen Energie und der potentiellen

Energie in der Falle zusätzlich beeinflusst werden. Die Gesamtausdehnung des Systems sowie die Interpartikelabstände sind sowohl interdependent als auch Funktionen aller eingehenden Größen, inklusive des Mischungsverhältnisses. Daher ist die Aufstellung eines exakten Kriteriums für die Mischung und Entmischung zweidimensionaler binärer Systeme nicht trivial.

Wie bereits in Abschnitt 4.1 erläutert, zeichnet sich ein ideales binären Modellsystem durch gleiche spezifische Ladungen und eine homogene Durchmischung aus. Der erste Punkt stellt sicher, dass es sich um ein zweidimensionales System handelt. Die homogene Durchmischung sorgt für ausreichend Wechselwirkungen beider Spezies und ist für den binären Charakter des Systems entscheidend. Das Ziel muss es also sein, die maßgeblichen Parameter für den Übergang zu idealen binären Mischungen zu identifizieren.

Eine systematische Untersuchung der Auswirkung aller eingehenden Parameter auf die Struktur ist nur mit Simulationen möglich. Der in Kap. 3.5 beschriebene BADCOP-MD-Code ist in der Lage, die Situation in der Randschicht hinreichend genau zu modellieren. Sowohl die einschließenden Kräfte als auch die Wechselwirkung zwischen den Partikeln wird in drei Dimensionen berechnet. Die spezifischen Ladungen $\zeta_{1,2}$ können direkt eingestellt werden und alle weiteren Parameter folgen konsistent. Spezies mit verschiedenen spezifischen Ladungen nehmen auf Grund der Levitationsbedingung unterschiedliche z -Positionen ein.

In diesem Abschnitt sollen zwei Fälle betrachtet werden. Zuerst werden die Parameter der Simulation entsprechend der im Experiment vorliegenden Werte gewählt und der Einfluss minimaler Abweichungen der spezifischen Ladungen der Spezies betrachtet. In einem zweiten Schritt wird die Auswirkung eines unabhängigen Parameters auf die Strukturierung bei identischen spezifischen Ladungen untersucht. Der einzige unabhängige Parameter ist die horizontale Einschlussstärke ω_{0xy} , da diese über den Radius der Mulde in der unteren Elektrode beeinflusst werden kann. Sowohl die Ladungen als auch die Abschirmlänge lassen sich zwar über die Ladungsdichte ρ_c in der Randschicht mithilfe der HF-Leistung und des Neutralgasdruck steuern, jedoch nicht unabhängig voneinander.

Ein Maß für die Durchmischung

Das primäre Ziel in dieser Arbeit ist das Erreichen einer Durchmischung vom Typ c) in Abb. 4.3. Eine Modifikation der Domänengröße der Spezies und die Herstellung von Gittern mit hoher Periodizität wird für ausgedehnte Systeme entscheidend. Um die radiale Entmischung der Spezies quantitativ beurteilen zu können, wird eine zur radialen oder Paarverteilungsfunktion $g(r)$ analoge Funktion

$$g_\alpha(r) = \frac{1}{N_\alpha 2\pi r dr} \sum_{i=1}^{N_\alpha} \delta(r - r_i) \quad (4.3)$$

definiert. Diese Funktion misst die Häufigkeit $H_\alpha(r)$ der Spezies α , normiert mit Partikelzahl N_α , als Funktion der radialen Koordinate r . Der Faktor $1/(2\pi r dr)$ berücksichtigt die zunehmende Häufigkeit von Partikeln mit Abstand von der Mitte der Falle. Numerisch wird ein Histogramm $H(r_n)$ der Abstände r_n von der Fallenmitte erstellt und entsprechend normiert. Für die quantitative Messung der relativen radialen Verteilung hat sich die mittlere

quadratische Abweichung von $g_\alpha(r)$ bewährt

$$\langle (\Delta g_\alpha)^2 \rangle = \frac{1}{N_r} \sum_{j=1}^{N_r} [g_1(r_j) - g_2(r_j)]^2, \quad (4.4)$$

wobei N_r die Anzahl an radialen Histogrammbehältern ist. Je kleiner diese Größe für ein untersuchtes System ist, desto gleichmäßiger sind beide Spezies über die gesamte Abmessung dieser kreisrunden Plasmakristalle verteilt. Zum Vergleich wird ebenfalls die mittlere quadratische Abweichung der absoluten Häufigkeiten $\langle (\Delta H_\alpha)^2 \rangle$ verwendet.

Nachbildung der Situation im Experiment

Um die Auswirkung der spezifischen Ladungen auf die Strukturierung finiter Systeme zu untersuchen, wurden Simulationen mit $N = 128$ Partikeln und einem Mischungsverhältnis von $\eta = 50\%$ durchgeführt. Lange Zeitreihen von $N_{\text{steps}} = 2 \times 10^6$ Simulationsschritten und simulated annealing (vgl. Kap. 3.5) wurden verwendet, um die Konfiguration minimaler Energie zu finden. Die horizontale Einschlussstärke wurde entsprechend typischer Werte im Experiment auf $\omega_{0,xy} = 6 \text{ s}^{-1}$ gesetzt. Für die Abschirmlänge wird die Näherung $\lambda_{s,\text{sim}} = b_{\text{WS},\text{exp}} \approx 0,6 \text{ mm}$ mit dem mittleren Interpartikelabstand im Experiment $b_{\text{WS},\text{exp}}$ verwendet. Obwohl dies nur für Zwei-Partikel-Systeme eine gute Näherung ist, liegen experimentell bestimmte Werte der Abschirmstärke im Bereich von $\kappa = b_{\text{WS}}/\lambda_s = 0,5 \dots 2,0$ [267–269]. Das Ladungsverhältnis wurde entsprechend früherer Vergleiche mit Simulationen auf $Q_{d,1}/Q_{d,2} = 1,2$ gesetzt [83] und die Ladungen gegenüber dem OML-Wert mit einem Faktor 0,25 versehen. Die Standardabweichung der Radien wurde auf $\sigma_{a_1} = \sigma_{a_2} = 0$ gesetzt, sodass beide Spezies keine Größenverteilung aufweisen. Um geringe Unterschiede der spezifischen Ladungen untersuchen zu können, wurden Simulationen mit $\zeta_1/\zeta_2 = 0,9 \dots 1,1$ durchgeführt.

Es ergeben sich die in Abb. 4.4 dargestellten radialen Verteilungen der Partikelspezies. Links sind die absoluten Häufigkeiten (*engl.* counts) und rechts die radiale Verteilungsfunktion $g_\alpha(r)$ gezeigt. Für die Bestimmung der radialen Positionen wurden die Projektion der Positionen in der $(x-y)$ -Ebene verwendet. Vor Erstellung der Histogramme wurden die Trajektorien auf die maximale Abmessung des Systems r_m normiert, um einen Vergleich mit Simulationsergebnissen bei abweichenden Parametern zu ermöglichen. Zudem wurde eine Mittelung der Histogramme von zehn Simulationsdurchläufen durchgeführt. In a) sind zusätzlich beispielhafte Grundkonfigurationen der Systeme gezeigt. Die Histogramme veranschaulichen die Entmischung der Spezies bei bereits geringen Abweichungen der spezifischen Ladungen sehr deutlich. Im Fall $\zeta_1 > \zeta_2$ ist die Aufenthaltswahrscheinlichkeit für die größere Spezies 1 (rot) am Rand der Systeme höher. Für $\zeta_1 < \zeta_2$ zeigt sich offensichtlich ein entgegengesetztes Bild. Allerdings legen die Histogramme nahe, dass der optimale Wert für eine möglichst homogene radiale Verteilung der Spezies hier bei $\zeta_1/\zeta_2 \approx 1,015 \neq 1$ liegt. Dies ist auf den oben erwähnte komplexen Zusammenhang zwischen Ladung, Masse, Einschlussstärke und Abschirmlänge zurückzuführen. Für stärkere Abweichungen von Eins entmischen sich die Spezies vollständig.

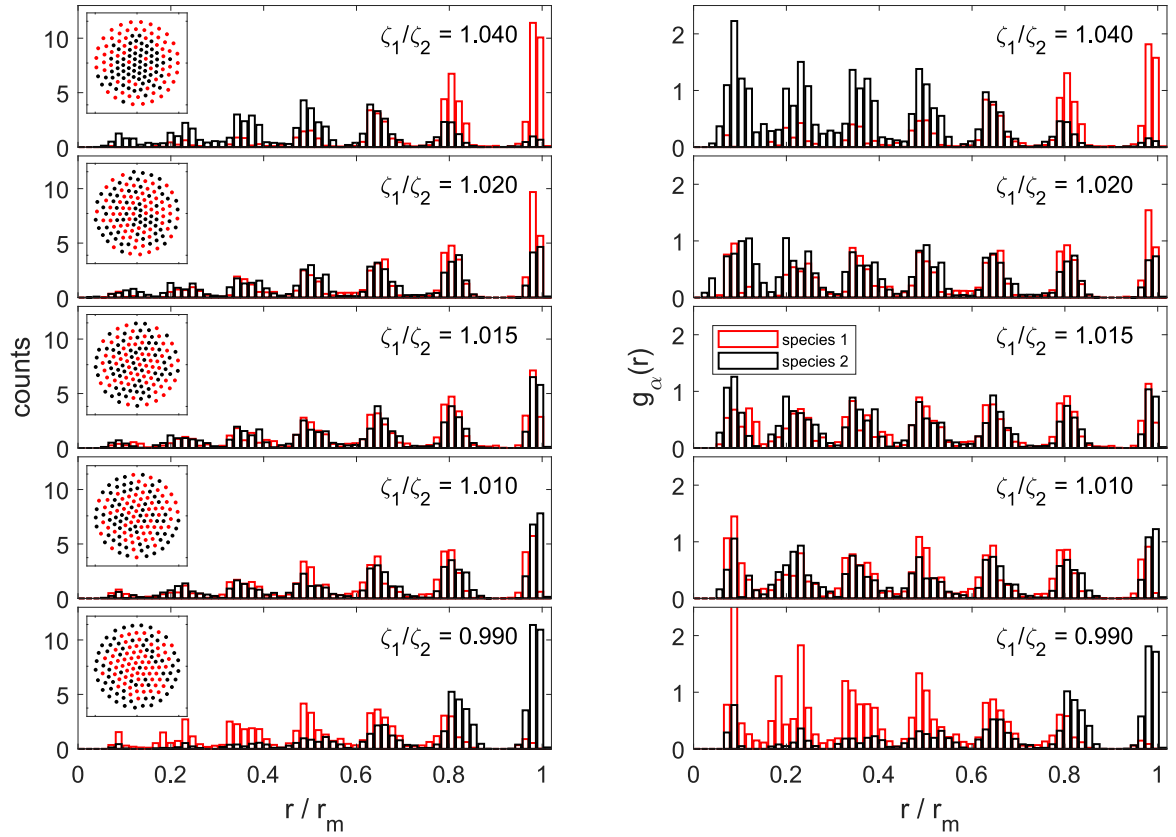


Abbildung 4.4: Einfluss der relativen spezifischen Ladung ζ_1/ζ_2 auf die radiale Verteilung zweier Spezies in einem finiten System. Das Ladungsverhältnis $Q_{d,1}/Q_{d,2} = 1,2$ ist konstant. Die radiale Koordinate r ist normiert mit der maximalen radialen Abmessung r_m . (Links) Absolute Häufigkeiten mit beispielhaften Positionen der Grundkonfigurationen im kleinen Ausschnitt. (Rechts) Radiale Verteilungsfunktion $g_\alpha(r)$. Im Gegensatz zu den absoluten Häufigkeiten ist hier eine Beurteilung für kleine r/r_m möglich. Für $\zeta_1/\zeta_2 = 1,015$ zeigt sich hier die optimale Durchmischung. Für abweichende Werte folgt eine radiale Entmischung der Spezies.

Für eine quantitative Betrachtung werden die Größen $\langle(\Delta g_\alpha)^2\rangle$ und $\langle(\Delta H_\alpha)^2\rangle$ herangezogen. In Abb. 4.5 sind diese als Funktion der relativen spezifischen Ladung aufgetragen. Hier tritt ein deutliches Minimum bei $\zeta_1/\zeta_2 \approx 1,015$ auf. Unter Verwendung der oben angegebenen Parameter sind somit die idealen Bedingungen eines zweidimensionalen Systems mit gleichzeitiger homogener Durchmischung nicht herstellbar. Die Ursache hierfür ist die Diskrepanz zwischen dem Einschlusspotential und der elektrostatischen Wechselwirkung der Partikel untereinander. Der elektrostatische Druck der äußeren Schalen auf die inneren Partikel führt zusammen mit der Rückstellkraft der Falle zu einer Überpopulation der größeren Spezies in der Fallenmitte. Die Herstellung eines idealen zweidimensionalen binären System muss daher mit einer Modifikation des Einschlusspotentials einhergehen.

Optimierung der Verteilung durch Anpassung des Einschlusses

Da sowohl die Ladung, als auch die Abschirmlänge durch die Plasmaeigenschaften bestimmt werden, ist eine vom Plasma unabhängige Kontrolle der Durchmischung nur über den horizontalen Einschluss möglich. Um die restlichen Parameter mit den im vorherigen Unterabschnitt

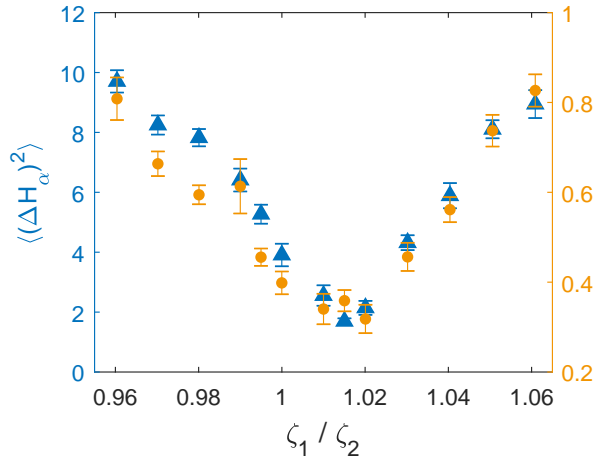


Abbildung 4.5: Parameter zur Beurteilung der radialen Verteilung der Spezies als Funktion der relativen spezifischen Ladung ζ_1/ζ_2 . Kleinere Werte entsprechen einer homogenen radialen Verteilung der Spezies. Es zeigt sich ein deutliches Minimum bei $\zeta_1/\zeta_2 \approx 1,015$. Geringe Abweichungen der optimalen relativen spezifischen Ladung beeinträchtigen bereits drastisch die radiale Durchmischung.

vorgestellten Simulationen vergleichen zu können, wird nur die horizontale Einschlussstärke $\omega_{0,xy}$ variiert. Im Experiment ist dieser Parameter über die Geometrie der Mulde in der unteren Elektrode zugänglich. Für sphärische Mulden kann die Näherung $\omega_{0,xy}^2 \propto g/R_c$ verwendet [168] und $\omega_{0,xy}$ bei sonst gleich bleibenden Parametern über den Radius der Mulde R_c einstellt werden.

Für diese Simulationsstudie wurde $\zeta_1/\zeta_2 = 1$ gesetzt, so dass die Spezies eine Monolage bilden. Die horizontale Einschlussstärke wurde im Bereich $1 < \omega_{0,xy}/s^{-1} < 10$ variiert. Ein Wert von $\omega_{0,xy} = 1 s^{-1}$ entspricht dabei einer sehr flachen parabolischen Mulde. Alle weiteren Parameter entsprechen denen der Studie zum Einfluss der relativen spezifischen Ladung.

Abb. 4.6 a) zeigt die resultierenden radialen Verteilungen $g_\alpha(r)$ für ausgewählte Werte von $\omega_{0,xy}$. Eine Verringerung von $\omega_{0,xy}$ führt zu einer deutlich homogenen radialen Verteilung der Partikel. Das spiegelt sich auch in den Größen $\langle (\Delta g_\alpha)^2 \rangle$ und $\langle (\Delta H_\alpha)^2 \rangle$ in b) wider. Die mittlere Abweichung der radialen Verteilungen nimmt bei $\omega_{0,xy} < 2 s^{-1}$ vergleichbare Werte wie bei der optimalen Durchmischung im vorherigen Abschnitt an. Die Diskrepanz beider Größen bei $\omega_{0,xy} = 1 s^{-1}$ ist durch die Normierung $1/r$ von $g_\alpha(r)$ zu erklären, wodurch zufällig bei $r/r_m = 0$ sitzende Partikel überproportional stark gewichtet werden.

Die Erkenntnisse dieser Simulationen zeigen, dass eine Reduktion der Rückstellkräfte eine homogene radiale Durchmischung zweidimensionaler binärer Plasmakristalle ermöglichen kann. Eine derartige Reduktion ist über zwei Wege möglich. Zum einen können kleinere Partikel gewählt werden, die in der Kombination die Anforderungen an reale binäre Systeme erfüllen müssen. Kleinere Partikel tragen ebenfalls kleinere Ladungen. Die Interpartikelkraft skaliert mit dem Produkt der Ladungen $Q_{d,i}Q_{d,j} \propto a_{d,i}a_{d,j}$, während die Rückstellkraft mit der Masse $m_{d,j} \propto a_{d,j}^3$ skaliert. Demnach sollte die Wahl kleinerer Partikel eine Auswirkung auf die horizontale Struktur zeigen.

Die zweite Möglichkeit liegt in der Modifikation der Elektrodenmulde. Neben dem Radius einer sphärischen Mulde kann die Form der Vertiefung auch grundlegend verändert werden. Gute Ergebnisse wurden mit einer zylindrischen Vertiefung mit angewinkelten Kanten erzielt (s. Abb. 3.2). Die Näherung einer harmonischen Rückstellkraft ist für diese Einschlussbedingungen nicht mehr uneingeschränkt gegeben. Hier muss ein Kompromiss bezüglich der

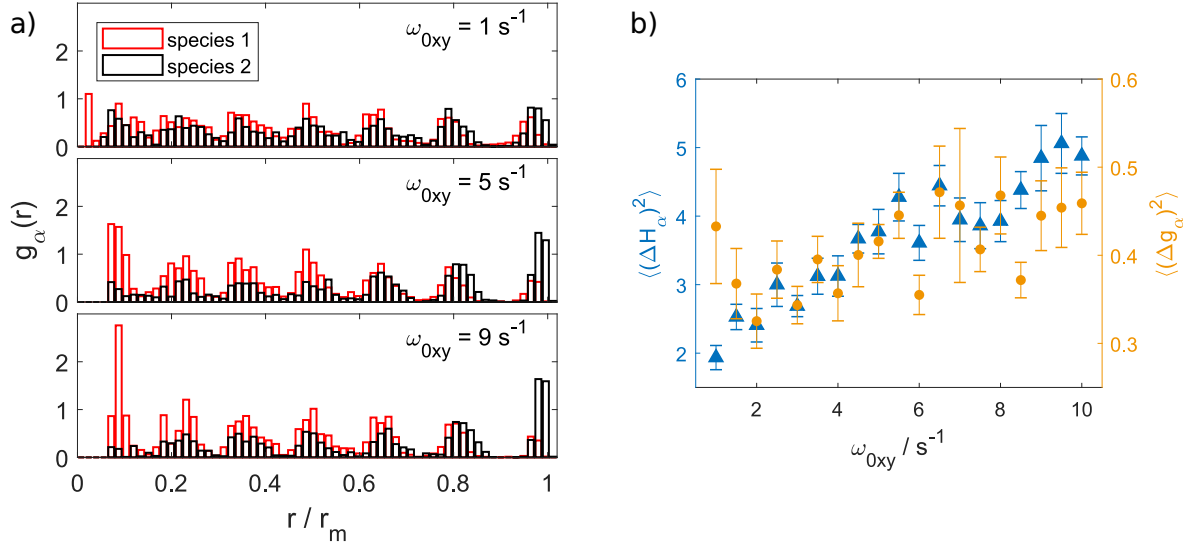


Abbildung 4.6: Einfluss der Einschlussstärke ω_{0xy} auf die Durchmischung finiter binärer Systeme mit $\zeta_1/\zeta_2 = 1$. a) Die radiale Verteilungsfunktion $g_\alpha(r)$ für ausgewählte ω_{0xy} . Eine Reduktion von ω_{0xy} resultiert in einer deutlichen Abnahme der Überpopulation der größeren Spezies (rot) in der Fallenmitte. b) Mittlere quadratische Abweichung der radialen Verteilung. Für kleine ω_{0xy} werden vergleichbare Werte $\langle (\Delta g_\alpha)^2 \rangle \approx 0,3$ und $\langle (\Delta H_\alpha)^2 \rangle \approx 2$ wie in dem optimalen Parametersatz in Abb. 4.5 erzielt.

Anforderungen des jeweiligen Experiments und der technischen Realisierbarkeit gemacht werden. Die Experimente in dieser Arbeit, die eine gute Durchmischung erfordern, wurden mit einer nicht sphärischen Mulde durchgeführt (Kap. 5 und Kap. 6). Die Methode der Konfigurationstemperatur in Abschnitt 3.6 hingegen erfordert ausdrücklich einen harmonischen Einschluss.

Strukturvariation während des Ätzprozesses

Reale Partikel weisen stets eine Größenverteilung auf. Die spezifischen Ladungen $\zeta_\alpha = Q_\alpha(a_{d,\alpha})/m_\alpha(a_{d,\alpha}) \propto 1/a_{d,\alpha}^2$ unterliegen demnach ebenfalls einer Streuung. Im Plasma unterliegt ζ abhängig vom Partikelmaterial einer zusätzlichen zeitlichen Variation. Eine vollständige Entmischung findet aus diesem Grund nur für größere Unterschiede in der spezifischen Ladung statt. Aus den Partikelradien und den Fehlerangaben des Herstellers lässt sich unter Vernachlässigung eines Fehlers der Massendichten eine Unsicherheit der relativen spezifischen Ladung zu $\Delta(\zeta_{MF}/\zeta_{SiO_2}) = 0,07$ berechnen.

Die Veränderung der Strukturierung finiter binärer Mischung aufgrund einer zunehmenden spezifischen Ladung der MF-Partikel kann auch im Experiment beobachtet werden. Eine Beispielmessung finiter binärer komplexer Plasmen über einen entsprechend langen Zeitraum zeigt die Variation der radialen Verteilung auf Grund des Ätzprozesses. In Abb. 4.7 sind die Positionen eines binären Systems bestehend aus $N = 87$ Partikeln gezeigt. Es handelt sich dabei um invertierte und gefilterte Kamerabilder³. Die roten Kästen und schwarzen Kreise markieren jeweils die MF- und SiO_2 -Partikel, wie sie von der in Kap. 3.2 vorgestellten Partikelverfolgung

³Die Pixelwolken einzelner Partikel sind klein gegen die Gesamtabmessung des Systems. Es wurde daher ein Dunkelbild abgezogen und ein GAUSSfilter auf das Bild angewandt.

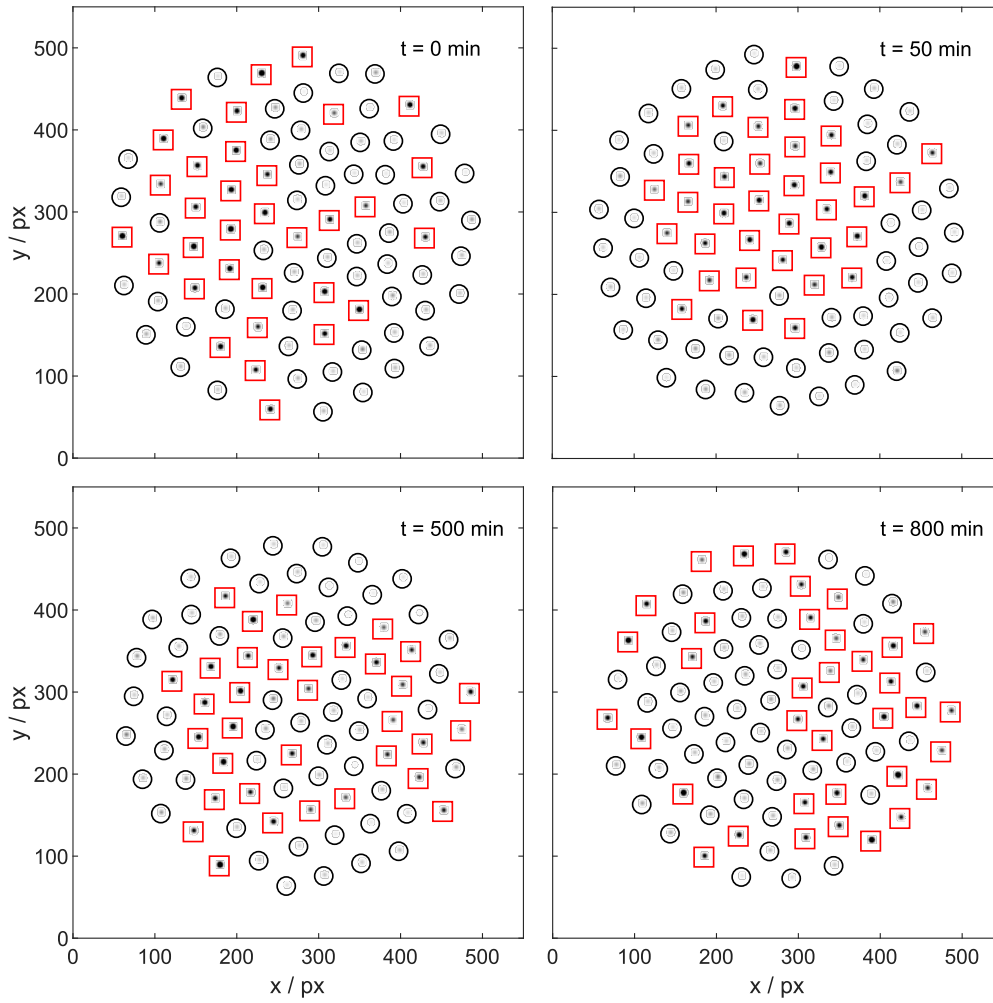


Abbildung 4.7: Strukturierung als Funktion der Plasmaexpositionszeit eines binären Systems aus Staubpartikeln im Experiment. Die MF-Partikel sind mit roten Kästen und die SiO_2 -Partikel mit schwarzen Kreisen markiert. Zu Beginn ($t = 0 \text{ min}$) sind die Partikel willkürlich verteilt. Nach etwa einer Stunde befinden sich die MF-Partikel vornehmlich im Zentrum. In den folgenden Stunden diffundieren die MF-Partikel zum Rand des Systems.

ermittelt wurden. Direkt nach Injektion der Partikel ($t = 0 \text{ min}$) sind die Spezies zufällig im Kristall verteilt. Die thermische Bewegung der Partikel ist ausreichend, damit sie ihre Potentialmulden verlassen können und sich ein energetisch günstiger Zustand einstellen kann. So ist bei $t = 50 \text{ min}$ die MF-Spezies im Zentrum des Systems lokalisiert, was für $\zeta_{\text{MF}} < \zeta_{\text{SiO}_2}$ spricht. Schließlich sind bei $t = 500 \text{ min}$ und $t = 800 \text{ min}$ die MF-Partikel zunehmend an den Rand des Systems diffundiert, was auf eine Zunahme von $\zeta_{\text{MF}}/\zeta_{\text{SiO}_2}$ hindeutet. Dieses Beispiel zeigt, dass sich die Änderung der relativen spezifischen Ladung der Partikel durch das Ätzen der MF-Spezies direkt in der Strukturierung realer Systeme beobachten lässt. Die Einstellung eines optimalen ζ_1/ζ_2 ist somit entscheidend für die Präparation zweidimensionaler binärer Mischungen.

4.4 Die Konfiguration als Maß für die relative Ladung

Das Ladungsverhältnis der Partikelspezies ist ein zentraler Parameter binärer komplexer Plasmen und hat sowohl Einfluss auf die Struktur (vgl. Kap. 4.3) als auch auf die Dynamik [241]. Eine weitere Charakterisierung binärer Mischungen bezüglich der relativen Ladung $Q_{d,1}/Q_{d,2}$ ist daher für die Bewertung der vorliegenden Systeme und einen Vergleich mit Simulationsarbeiten unabdinglich. In Abschnitt 4.1 wurde die Forderung nach einem messbaren Unterschied in den Partikelradien formuliert. Nach dem Kugelkondensatormodell (vgl. Gl. (2.14)) skaliert die Ladung linear mit dem Partikelradius. Der Unterschied der Radien bzw. Ladung beider Spezies muss größer sein als die Varianz innerhalb einer Spezies. In Vorarbeiten wurde ein heuristischer Vergleich der Interpartikelabstände der Spezies im Experiment und in Simulationsarbeiten hergestellt [83]. Das auf diese Weise bestimmte Ladungsverhältnis ergab sich zu $Q_{d,MF}/Q_{d,SiO_2} = 1,2 \pm 0,1$. Hier soll ein weiterer Ansatz, das Ladungsverhältnis aus der Struktur zu bestimmen, vorgestellt werden. Die sogenannte Konfigurationstemperatur (*engl.* *configurational temperature*) ermöglicht die Messung der Partikelladung über einen Vergleich mit der kinetischen Temperatur in einem iterativen Verfahren (vgl. Kap. 3.6). Eine Anwendung des Formalismus auf komplexe Plasmen erfolgte bereits von HIMPEL *et al.* [144, 145, 270]. Die hier vorgestellten Experimente wurden im Rahmen einer Kollaboration mit Greifswald durchgeführt, mit dem Ziel die absoluten Partikelladungen in einem Mehrkomponentensystem zu bestimmen. In dieser Arbeit wird ein Ansatz vorgestellt mit dem eine robuste Bestimmung des Ladungsverhältnisses der Partikelspezies möglich ist.

Konfigurationstemperatur binärer Mischungen

Die Anwendung der Konfigurationstemperatur für eine Ladungsmessung in monodispersen Systemen wurde in Kap. 3.6 vorgestellt. An dieser Stelle erfolgt der Übergang zu binären Systemen mit Partikeln unterschiedlicher Ladung und Masse. Zunächst erfolgt ein Test der Methode an Simulationsdaten mit Spezies 1 und 2. Aufgrund der Einführung einer zweiten Partikelspezies treten zusätzliche freie Parameter auf. Die Massen können erneut konsistent mit der iterativen Ladungsbestimmung aus der Fallensteifigkeit k ermittelt werden. Es verbleiben die Ladungen $Q_{d,1}$ und $Q_{d,2}$ der Spezies sowie die Abschirmlänge λ_s . Wie bei den monodispersen Systemen ist zu erwarten, dass die Abschirmlänge im Falle moderater Kopplung nur einen minimalen Einfluss auf die Ladungsmessung hat. Es ist daher sinnvoll, die Analyse auf die Parameter $Q_{d,1}$ und $Q_{d,2}$ zu beschränken und λ_s mit dem mittleren Interpartikelabstand b_{WS} gleichzusetzen. Wie sich zeigen wird, hat die Abschirmlänge einen vollständig vernachlässigbaren Einfluss auf die Bestimmung des Ladungsverhältnisses.

Im Falle binärer Mischungen muss das Problem umformuliert und die Gleichung

$$k_B \sqrt{T_{kin,1} T_{kin,2}} = k_B T_{conf}(Q_{d,1}, Q_{d,2}) \quad (4.5)$$

bezüglich der Variablen $Q_{d,1}$ und $Q_{d,2}$ gelöst werden (vgl. Gl. (3.34)). Die Temperaturen $T_{kin,1}$ und $T_{kin,2}$ können aus den Trajektorien bestimmt werden. Der geometrische Mittelwert der Temperaturen hat sich als gutes Maß für die mittlere Temperatur in binären Systemen mit

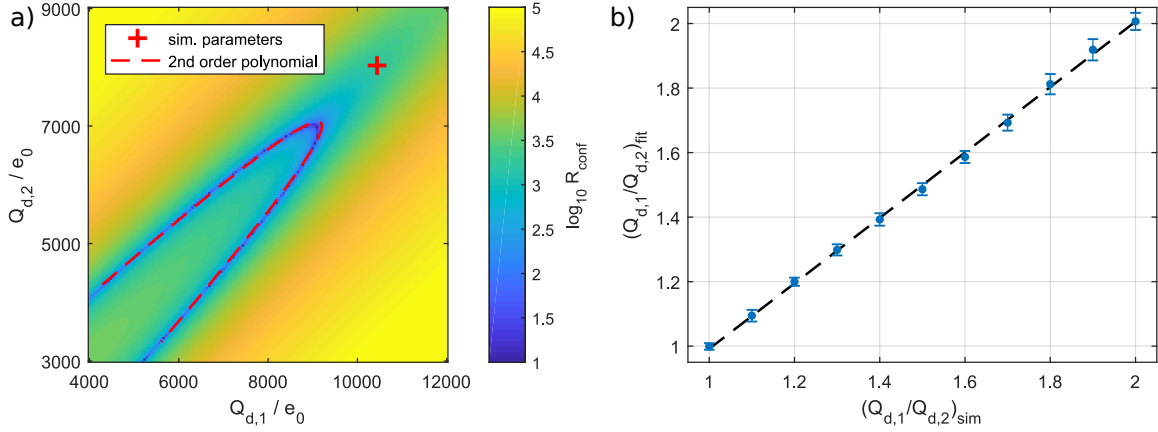


Abbildung 4.8: Bestimmung der relativen Ladung aus der Konfigurationstemperatur binärer Mischungen. a) Residuenkarte der Gl. (4.5). Das Ladungsverhältnis wird durch Anpassen einer rotierten Parabel an die Lösungsmenge gewonnen. b) Zusammenhang zwischen eingestelltem und gemessenem Ladungsverhältnis. Die Übereinstimmung ist exzellent.

unterschiedlichen Temperaturen der Spezies bewährt. Es sind keine Bedingungen an die Temperaturen der Spezies gestellt, sofern beide Spezies stark gekoppelt sind. Im Gegensatz zu monodispersen Systemen kann keine mittlere Ladung Q_d verwendet werden, sondern es muss allen Partikeln die mittlere Ladung ihrer Spezies $Q_{d,1}$ oder $Q_{d,2}$ zugeordnet werden. Im Experiment ist dazu die Unterscheidung der Partikel nach der in Kap. 3.2 vorgestellten Methode erforderlich.

Die Residuenkarte binärer Systeme wird analog zum monodispersen Fall nach dem Schema in Abb. 3.9 b) berechnet. Allerdings muss die Fallensteifigkeit auf Grund der abweichenden Massen für beide Spezies separat bestimmt werden. Eine beispielhafte Karte ist in Abb. 4.8 a) gezeigt. Die Lösungsmenge von Gl. (4.5) stellt in erster Näherung eine um einen Winkel α rotierte Parabel dar⁴. Das Verhältnis der Ladungen $Q_{d,1}$ und $Q_{d,2}$ im Scheitelpunkt dieser Parabel entspricht exakt dem Ladungsverhältnis. Der Grund für die Abweichung der absoluten Werte von den Eingabeparameter liegt in der Schätzung der Abschirmlänge und Nutzung lediglich eines einzelnen Bildes begründet. Numerisch lässt sich das Ladungsverhältnis direkt über

$$\frac{Q_{d,1}}{Q_{d,2}} = \frac{1}{\tan(\alpha_{\text{fit}})} \quad (4.6)$$

aus dem in der Anpassung erhaltenen Rotationswinkel α_{fit} der Parabel bestimmen.

Eine Parameterstudie an Simulationsdaten offenbart eine exzellente Übereinstimmung zwischen den Eingabeparametern und den Ergebnissen der Anpassung, wie Abb. 4.8 b) zeigt, und bestätigt die Parabelnäherung. Die Genauigkeit der Methode hängt im Wesentlichen von der Auflösung der Residuenkarte ab. Hier wurde eine Rasterung von $\sim 50 e_0$ pro Kästchen verwendet. Tatsächlich hat in binären Systemen die Abschirmlänge einen vernachlässigbaren

⁴Eine Betrachtung von Gl. (3.27) lässt vermuten, dass es sich tatsächlich um die Überlagerung mehrerer Parabeln handeln muss. Die Wahl einer einzelnen Parabel reduziert jedoch drastisch die Anzahl an Anpassungsparametern und ermöglicht eine sehr stabile Auswertung der Daten.

Einfluss auf die Bestimmung der relativen Ladung. Das lässt sich in der Annahme eines gleichen λ_s für beide Spezies begründen. Die Methode kann erweitert werden, um in einem zweiten Schritt die absoluten Ladungen und die Abschirmlänge zu bestimmen.

Die Konfigurationstemperatur hat sich exzellentes Maß für das Ladungsverhältnis in binären komplexen Plasmen bewährt. Im folgenden Abschnitt wird die Methode auf die Daten aus Experimenten an binären Mischungen aus MF- und SiO₂-Partikeln angewandt.

Relative Ladung experimenteller Systeme

Nachdem das Potential der Konfigurationstemperatur als Ladungsdiagnostik in binären Systemen mithilfe von Simulationsdaten exploriert wurde, ist eine erste Anwendung auf reale binäre Systeme möglich. Die Methode erlaubt eine genaue Messung der Ladungsverhältnisse binärer komplexer Plasmen und stellt somit einen weiteren Baustein in der Charakterisierung dieses Modellsystems dar. Wie am Anfang dieses Kapitels gezeigt wurde, ist der Partikelradius der SiO₂-Spezies im Plasma konstant, während die MF-Spezies einer Ätzrate von $\Delta a_{\text{MF}}/\Delta t = -1,25 \text{ nm/min}$ unterliegt [207]. Da bei konstantem Floatingpotential die Ladung linear mit dem Partikelradius skaliert, ist zu erwarten, dass die Messung des Ladungsverhältnisses $Q_{\text{d,MF}}/Q_{\text{d,SiO}_2}$ eine dementsprechende Drift aufweist.

In Abb. 4.9 ist die Analyse eines experimentellen Beispielsystems gezeigt. Die Mischung besteht aus 28 MF- und 28 SiO₂-Partikeln und das System beinhaltet, abgesehen vom Zentrum, in jeder Schale Partikel beider Spezies. In 4.9 a) sind die aus 500 Bildern rekonstruierten Trajektorien aller Partikel gezeigt. Die Positionen wurden mit einer Bildrate von 180 fps ermittelt. Die Partikel vollführen hauptsächlich thermische Bewegungen in ihrer Potentialmulde, wie es die Methode erfordert. Aus Geschwindigkeitsverteilungen ergeben sich die kinetischen Temperaturen $T_{\text{kin,MF}} = (650 \pm 10) \text{ K}$ und $T_{\text{kin,SiO}_2} = (450 \pm 10) \text{ K}$.

Die Residuenkarte in Abb. 4.9 b) zeigt analog zur Simulation eine Lösungsmenge, die einer rotierten Parabel entspricht. Auffällig sind die im Vergleich zur OML-Theorie geringen Ladungen der Partikel. Beide Spezies nehmen in diesem Beispiel nur 10% der OML-Ladung an. Für den hier vorliegenden Neutralgasdruck von $p = 6 \text{ Pa}$ ist eine stoßbedingte Erhöhung des Ionenstroms jedoch zu erwarten (vgl. Kap. 2.3). Zudem wurde für die Analyse $\lambda_s = b_{\text{WS}}$ gesetzt. Obwohl es keinen Einfluss auf das resultierende Ladungsverhältnis hat, skaliert die Wahl von λ_s jedoch beide Ladungen gleichermaßen. Ein derartiger Effekt tritt auch bei der Analyse von Simulationsdaten auf.

Die Methode benötigt einen harmonischen horizontalen Einschluss, um die Fallensteifigkeit konsistent mit dem vorgestellten iterativen Verfahren bestimmen zu können. Aus diesem Grund wurde eine sphärische Mulde verwendet. Die Interpartikelkraft F_x^{int} entlang der x -Achse in 4.9 c) ist für beide Spezies linear und bestätigt somit den harmonischen Einschluss der Partikel. Das Ladungsverhältnis kann für jedes Bild einzeln gewonnen werden. Eine Bestimmung von $Q_{\text{d,MF}}/Q_{\text{d,SiO}_2}$ für ein Intervall aus 1000 Bildern zeigt eine symmetrische Streuung mit geringer Standardabweichung in dem Histogramm in Abb. 4.9 d). In diesem Beispiel ergibt sich für das Ladungsverhältnis $Q_{\text{d,MF}}/Q_{\text{d,SiO}_2} = 1,197 \pm 0,006$. Der auf diese Weise ermittelte Wert ist in sehr guter Übereinstimmung mit dem bereits erwähnten heuristischen Vergleich mit Simulationsdaten, der $Q_{\text{d,MF}}/Q_{\text{d,SiO}_2} = 1,2 \pm 0,1$ ergab [83]. Die Ergebnisse zeigen, dass sich

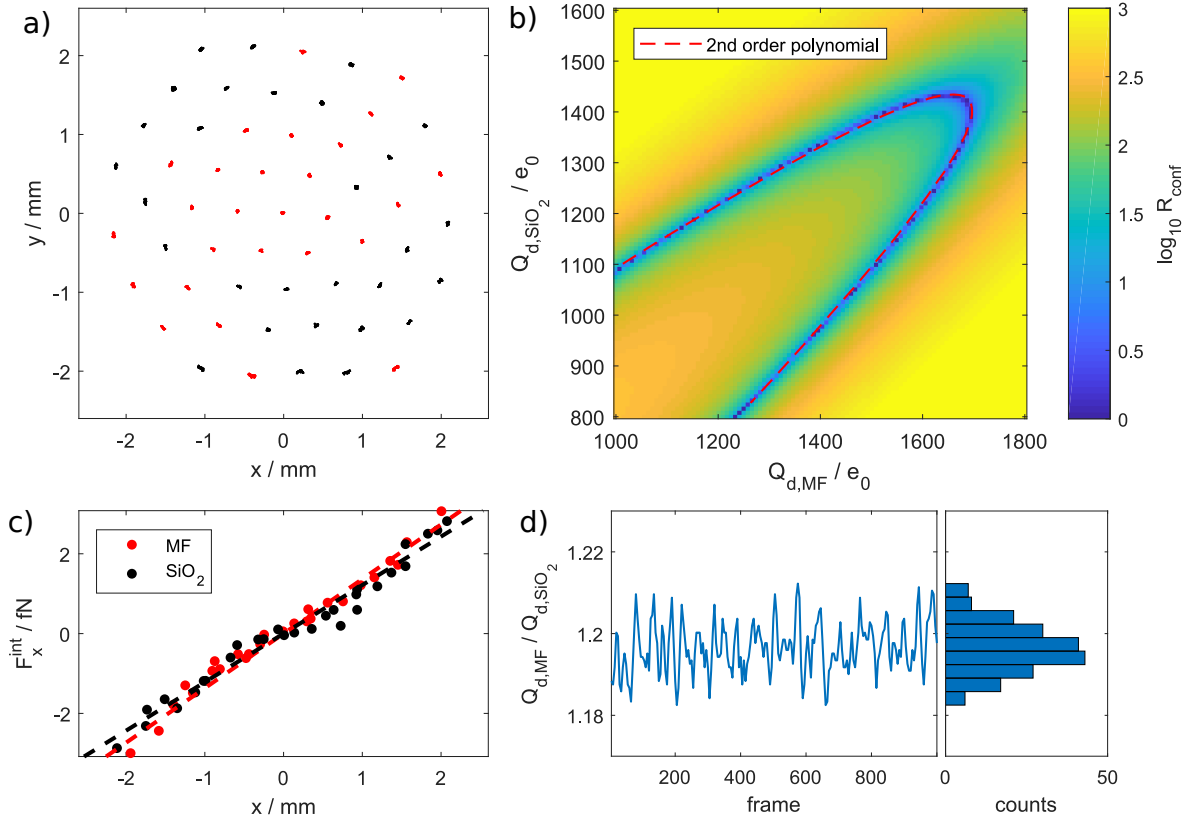


Abbildung 4.9: Analyse der relativen Ladung unter Verwendung der Konfigurationstemperatur an einem Beispielsystem mit $N = 56$ Partikeln. a) Trajektorien eines Kristalls bestehend aus MF- (rot) und SiO_2 -Partikeln (schwarz) in einem Zeitintervall von 500 Bildern. b) Residuenkarte für die Variation der Ladungen Q_{MF} und Q_{SiO_2} mit angepasster rotierter Parabel. c) Interpartikelkraft entlang der x -Richtung. Die angepassten Geraden zeigen unterschiedliche Steigungen $k_{\text{MF}} = m_{d,\text{MF}} \omega_{0xy}^2 \neq k_{\text{SiO}_2} = m_{d,\text{SiO}_2} \omega_{0xy}^2$. d) Ergebnis der relativen Ladungen über mehrere Einzelbilder. Die geringe Streuung zeigt die hohe Präzision dieser Methode.

mit der vorgestellten Methode plausible Ladungsverhältnisse bestimmen lassen. Zeitabhängige Messungen deuten auf eine Abnahme des Ladungsverhältnisses hin. Dies ist auf die endliche Ätzrate der MF-Spezies zurückzuführen und zum entspricht den Erwartungen. Der Trend zeigt keine Abhängigkeit von der Systemgröße, der HF-Leistung und dem Neutralgasdruck. Wenn sich die mittleren Levitationshöhen der Spezies zu stark unterscheiden, tritt ein zusätzlicher Fehler auf, da die Konfigurationstemperatur für ein zweidimensionales System modelliert ist. Dies führt zu einer Unterschätzung des tatsächlichen Ladungsverhältnisses.

Für die Bestimmung der relativen Ladung mithilfe der Konfigurationstemperatur wird ein Vergleich mit der kinetischen Temperatur des Ensembles hergestellt. An dieser Stelle gehen als einzige Annahmen die mittleren Partikelmassen in die Analyse ein. Für die SiO_2 -Spezies ist keine Größenänderung der Partikel zu erwarten [207] und es wird daher der Herstellerwert angenommen. Die Masse der MF-Spezies wird anhand der Präparationszeit und der Ätzrate geschätzt. Die genaue Präparationsmethode wird im folgenden Abschnitt 4.5 beschrieben. Allerdings sind die Auswirkung des Massefehlers auf die kinetische Temperatur $T_{\text{kin}} = \sqrt{T_{\text{kin, MF}} T_{\text{kin, SiO}_2}}$ gering. Für einen bereits nach oben abgeschätzten relativen Radiusfehler

der MF-Spezies von $\Delta a_{d,\text{MF}}/a_{d,\text{MF}} = 0,02$ und

$$\Delta T_{\text{kin}}(\Delta a_{d,\text{MF}}) = 1,5 \sqrt{T_{\text{kin},\text{MF}} T_{\text{kin},\text{SiO}_2}} \frac{\Delta a_{d,\text{MF}}}{a_{d,\text{MF}}} \quad (4.7)$$

erhält man einen Fehler von $\Delta T_{\text{kin}}/T_{\text{kin}} = 0,03$.

Das ermittelte Ladungsverhältnis ist in guter Übereinstimmung mit einer vorangegangenen Abschätzung und erfüllt zudem die zu Beginn gestellte Forderung nach einem messbaren Unterschied in den Partikelladungen. Die in diesem Abschnitt vorgestellten Ergebnisse sind von großem Wert für die Präparation binärer Mischungen in zukünftigen Experimenten, da sich mithilfe der Konfigurationstemperatur das Ladungsverhältnis in situ bestimmen lässt. Auf diese Weise können binäre Systeme mit ideal eingestellter relativer Ladung präpariert werden.

4.5 Präparation zweidimensionaler binärer Mischungen

Die aus den vorherigen Abschnitten des Kapitels erhaltenen Erkenntnisse können dafür verwendet werden, ein Präparationsschema für finite zweidimensionale binäre Mischungen aufzustellen. Im ersten Schritt wird die vertikale Kräftebilanz optimal eingestellt. Ein besonderer Fokus muss auf den initialen Partikelradien liegen, da durch die plasmahärenten Ätzprozesse eine vertikale Entmischung der Spezies in zwei getrennte Lagen unvermeidbar ist. Für ein maximales Größenverhältnis $a_{d,1}/a_{d,2} = \sqrt{(\rho_{d,2}/\rho_{d,1})}$ sind Materialien mit möglichst verschiedenen Massendichten notwendig. An die Materialien sind jedoch noch weitere Anforderungen gestellt. Das Material einer der Spezies sollte stabil im Plasma sein, so dass die Partikel lediglich eine vernachlässigbare Größenänderung auch über längere Zeit in der Entladung erfahren. Die andere Spezies hingegen muss durch die plasmahärenten Prozesse in der Größe veränderbar sein. Des Weiteren ist die Zeitskala des Ätzprozesses entscheidend, da diese nicht nur die Präparations-, sondern auch die verfügbare Einschlusszeit einer zweidimensionalen binären Mischungen festlegt. Die veränderliche Partikelsorte wird aus diesem Grund so gewählt, dass der initiale mittlere Partikelradius größer ist, als durch die Bedingung $a_{d,1}^2 \rho_{d,1} = a_{d,2}^2 \rho_{d,2}$ gefordert ist. Der Betrag dieser zu wählenden Abweichung hängt von der Ätzrate, der vorliegenden Größenverteilung und, falls vorhanden, von zusätzlichen Messungen der tatsächlichen mittleren Größe der Partikelsorte ab. Nach der Injektion zweier Partikelspezies mit diesen Eigenschaften wird die Spezies mit größer gewähltem Radius zunächst unterhalb der stabilen Spezies levitieren. Durch den Ätzprozess nimmt der Partikelradius a_d ab und die spezifische Ladung $Q_d(a_d)/m_d(a_d) \propto 1/a_d^2$ zu, was wiederum nach $Q_d/m_d \propto z$ zu einer höheren Levitationsposition in der Randschicht führt. Auf diese Weise nähern sich die beiden Lagen der Spezies an, bis die mittleren z -Positionen übereinstimmen. Da die Ätzprozesse nicht vollständig unterbunden werden können, schreitet die Abnahme des Partikelradius weiterhin voran, so dass die zweite Spezies ab einem gewissen Zeitpunkt oberhalb der stabilen Spezies levitiert.

Für alle Messungen dieser Arbeit wurden SiO_2 -Partikel als stabile Spezies gewählt, da dieses Material bereits in verschiedenen anderen Messungen eine vernachlässigbare Größenänderung gezeigt hat [271, 207]. Für die veränderliche Spezies wurde aus zwei Gründen MF gewählt: Zum Einen sind Partikel dieses Materials mit geringen Größenverteilungen erhältlich. Daher sind diese Partikel weit verbreitet im Feld der komplexen Plasmen und werden in zahllosen Experimenten verwendet. Zum anderen weist dieses Material eine moderate Ätzrate auf, die sowohl eine angemessene Präparations-, als auch Experimentierzeit ermöglicht [206, 207].

In einem Großteil der vorgestellten Experimente dieser Arbeit wurde eine MF-Spezies mit einem initialen Radius von $a_{\text{d,MF,init}} = 4,78 \pm 0,07 \mu\text{m}$ verwendet. Nach einer Präparationszeit von 4,5 h bis 5,5 h beträgt der finale Radius im Mittel $a_{\text{d,MF,fin}} \approx 4,43 \pm 0,07 \mu\text{m}$. Dies stimmt sehr gut mit einem heuristischen Vergleich der Interpartikelabstände binärer Mischungen in Experimenten und Simulationen überein [83]. Da die Schwankung des finalen Radius auf Grund variierender Präparationszeiten unterhalb der Standardabweichung der Partikel liegt, wird der mittlere Radius $a_{\text{d,MF}} = 4,43 \pm 0,07 \mu\text{m}$ in allen Kapiteln verwendet. Die Wahl von SiO_2 -Partikeln als stabile und von MF-Partikeln als größenveränderliche Spezies haben sich als ideale Kombination bewährt. Dieses Präparationsschema lässt sich auf beliebige Materialkombinationen anwenden, solange die hier aufgestellten Anforderungen erfüllt sind. Da in allen Messungen eine Drift der relativen spezifischen Ladungen vorliegt, wird in den folgenden Kapiteln für die Bestimmung des statistischen Fehlers von Wiederholungsmessungen die Standardabweichung statt des Fehlers der Einzelmessung verwendet.

Die Einstellung der optimalen horizontalen Kräftebilanz kann über eine entsprechende Mulde in der unteren Elektrode stattfinden. Die Erkenntnisse zur radialen Entmischung aus Abschnitt 4.3 zeigen, dass homogen durchmischte binäre Kristalle in Fallen mit geringer Rückstellkraft möglich sind. Hier sind jedoch Simulationen für die jeweilige Situation im Experiment nützlich. Nicht-sphärische Mulden können z. B. mit einem „tenth order potential“ modelliert werden [272]. In den Experimenten in Kap. 5 und Kap. 6 kamen zylindrische Mulden mit flachen Kanten zum Einsatz (vgl. Abb. 3.2 b)).

Schließlich zeigen die Ergebnisse der Konfigurationstemperatur in Abschnitt 3.6, dass eine präzise Bestimmung des Ladungsverhältnisses aus den Trajektorien möglich ist. Für zukünftige Experimente kann die Methode in operando angewandt werden, um ein System mit optimalem Ladungsverhältnis präparieren zu können.

5 | Lasermanipulation binärer Mischungen

Zur Anregung dynamischer Prozesse hat sich im Feld der komplexen Plasmen die Lasermanipulation als minimalinvasives Werkzeug bewährt. Ein fokussierter Laserstrahl mit einer Leistung von wenigen hundert Milliwatt reicht aus, um Mikropartikel mit Massen von 10^{-12} kg zu beschleunigen. Im Gegensatz zu elektrischen und magnetischen Feldern erzeugt ein Laserstrahl keine Driften der Plasmaspezies, die sowohl die Dynamik der Staubpartikel, als auch deren Aufladung beeinflussen könnten. In monodispersen Systemen wurde Lasermanipulation für zahlreiche dynamische Methoden eingesetzt: Die Anregung von Oszillationen eines einzelnen Partikels mit einem fokussierten Laserstrahl [133], die Erzeugung MACHscher Kegel [47] oder die Anregung von Wellen in eindimensionalen [140] oder zweidimensionalen Plasmakristallen [40]. Neben strukturellen Modifikationen durch die Manipulation einzelner Partikel mithilfe optischer Pinzetten [198], sind kollektive Manipulationen des gesamten Ensembles mit der in Abschnitt 3.4 vorgestellten Laserheizung möglich. Letztere Methode ermöglicht das gezielte Herbeiführen von Phasenübergängen, so dass flüssige und strömende komplexe Plasmen präpariert werden können [234, 66].

Für monodisperse Systeme spielt die exakte Natur der Wechselwirkung von Laserlicht mit den Partikeln eine untergeordnete Rolle. Es ist lediglich sicherzustellen, dass der Laserstrahl die Partikel nicht irreversibel modifiziert. Bei Partikeln mit Platinbeschichtung wurde eine explosive Evaporation der Beschichtung beobachtet, die eine raketengleiche Beschleunigung (*engl.* rocket force) und Zerstörung der Partikel hervorrief [273]. Andererseits zeigen die in der komplexen Plasmaforschung gängigen Melamin-Formaldehyd Partikel in dem Laserstrahl einer optischen Pinzette zwar eine Veränderung, wenn sie für mehrere Sekunden eingefangen werden [274], der Prozess ist jedoch reversibel und skaliert mit der Bestrahlungszeit. Neben dem Strahlungsdruck wurde bereits eine photophoretische Kraft auf die Partikel in komplexen Plasmen vermutet, konnte jedoch bisher nicht eindeutig identifiziert werden [224, 275]. In binären Mischungen sind Partikel verschiedener Größe und Materialien vorhanden. Modelle für die Lichtkraft sagen eine Skalierung mit dem Partikelquerschnitt voraus. Es ist zu erwarten, dass in binären Mischungen auch die Bilanz der Lichtkräfte verändert wird. Eine genaue Vermessung dieser Kräfte ist für die Manipulation unabdingbar.

In diesem Kapitel wird ein Methode vorgestellt, mit der erstmals im Feld der komplexen Plasmen eine Aufschlüsselung der Komponenten der Lichtkraft auf Mikropartikel in Niederdruckplasmen möglich ist [276]. Entscheidend für die Messung der Beiträge von

Strahlungsdruck und Photophorese zur Laserkraft ist die Verwendung von finiten binären Systemen. Die Analyse der relativen Laserkräfte auf die Partikelspezies erlaubt eine drastische Vereinfachung der zugrunde liegenden Modelle.

Das Kapitel gliedert sich wie folgt. Zunächst werden die Möglichkeiten der Laserkraftmessung im Experiment diskutiert und der in dieser Arbeit verwendete Ansatz, die Messung der kinetischen Temperatur in einer Laserheizung, vorgestellt. Die Methode wird auf finite binäre Mischungen angewandt und das Verhältnis der Laserkräfte an experimentelle Daten bestimmt. Berechnungen der Lichtstreuung und -absorption an den im Experiment verwendeten Partikeln ermöglichen eine Abschätzung der von den Partikeleigenschaften abhängigen Koeffizienten in den Ausdrücken der Kraftkomponenten. Der mathematische Apparat hierfür wurde in Abschnitt 2.6 vorgestellt. Die Messergebnisse und Berechnungen ergeben ein konsistentes Gesamtbild, dessen Gültigkeit im Anschluss diskutiert wird.

5.1 Methoden der Laserkraftmessung

Die gesamte, durch einen Lichtstrahl auf ein sich in einem Gasvolumen niedrigen Drucks befindliches, einzelnes Mikropartikel ausgeübte Kraft ist

$$F_L = I\pi a_d^2 \left[\frac{q_{pr}}{c_0} - J_1 \frac{a_d}{3k_d} \frac{p}{T_n} \right] \quad (5.1)$$

und hängt von der Wellenlänge des Lichts, den optischen Partikeleigenschaften und von der Querschnittsfläche des Partikels ab. Für binäre Mischungen ist zu klären, inwiefern sich die Kräfte oder, da die Partikelspezies verschiedene Massen aufweisen, die Beschleunigungen, unterscheiden.

Bei der Planung eines Experimentes zur Messung der Laserkraft müssen mehrerer Aspekte berücksichtigt werden. Um die Laserkraft auf ein einzelnes Partikel zu messen, kann diese mit einer bekannten Kraft kompensiert und so auf die Laserkraft geschlossen werden. Ein Beispiel ist die Rückstellkraft des horizontalen parabolischen Einschlusspotentials. Nutzt man einen Laserstrahl, um das Partikel horizontal aus seiner Ruhelage auszulenken, so erhält man theoretisch aus der maximalen Auslenkung r_{\max} die Laserkraft, da an diesem Punkt $m_d \omega_{0xy}^2 r_{\max}^2 = F_L$ gilt. Allerdings kann ein Partikel in dieser Position nicht stabil gehalten werden. Ein verfeinerter wurde Ansatz von BIN LIU *et al.* verfolgt. Die Autoren haben eine Anpassung der Bewegungsgleichung mit freien Parametern an die tatsächliche Partikeltrajektorien durchgeführt [71]. In beiden Fällen erfordert die Methode eine große Anzahl an Messungen, um aussagekräftige Ergebnisse zu erhalten. Zusätzlich muss die Partikelmasse m_d , die Stärke der parabolischen Falle ω_{0xy} und die Intensität des Lasers I sehr genau bekannt sein.

Der in dieser Arbeit verwendete Ansatz unterscheidet sich vollständig von den oben erwähnten Beispielen und beruht auf der Tatsache, dass die kinetische Temperatur eines Partikelensembles in der Laserheizung proportional zur Strahlungsleistung des Lasers ist. Messungen zeigen, dass ein Zusammenhang der Form $T_{\text{kin}} \propto P_L^2 \propto I^2$ zwischen der eingestellten

Laserleistung P_L und der kinetischen Temperatur T_{kin} besteht [224, 236]. Im folgenden Abschnitt wird ein Modell vorgestellt, dass diesen Zusammenhang abbildet und somit eine Bestimmung der Laserkraft aus der kinetischen Temperatur erlaubt.

5.2 Modell der kinetischen Temperatur

Ein Modell für die kinetische Temperatur eines einzelnen Partikels in Abhängigkeit der Laserkraft wurde von WOLTER und MELZER aufgestellt [224]. Gleichsetzen der kinetischen und thermischen Energie liefert die kinetische Temperatur $T_{\text{kin}} = \frac{1}{2}m_d\langle v^2 \rangle / k_B$. Eine Modellierung der kinetischen Temperatur ist mithilfe des Mittelwerts des Geschwindigkeitsquadrats $\langle v^2 \rangle$ möglich. Die Herleitung eines analytischen Ausdrucks für $\langle v^2 \rangle$ in Abhängigkeit einer externen stochastischen Kraft beruht auf den folgenden vereinfachenden Annahmen. Gegeben sei ein einzelnes, ruhendes Partikel, dass in zufälligen Zeitabständen von einem einzelnen Laserstrahl entlang der x -Achse mit der Kraft F_L beschleunigt wird. Die mittlere Bestrahlungsdauer des Partikels sei τ_1 . Dann lässt sich der Prozess in zwei Phasen unterteilen. Während der Bestrahlung wird das Partikel beschleunigt und entsprechend der Geschwindigkeit durch die EPSTEIN-Reibung abgebremst. Sobald das Partikel nicht mehr bestrahlt wird, wirkt nur noch die Reibungskraft bis sich das Partikel wieder in Ruhe befindet. Die Bewegungsgleichungen dieser beiden Phasen lauten

$$m_d \ddot{x} = -m_d \beta \dot{x} + F_L \quad \text{falls } 0 < t < \tau_1 \quad (5.2)$$

$$m_d \ddot{x} = -m_d \beta \dot{x} + 0 \quad \text{falls } t > \tau_1. \quad (5.3)$$

Die Lösung der inhomogenen linearen Differentialgleichung 2. Ordnung für den Fall $0 < t < \tau_1$ ist durch

$$x(t) = \frac{F_L}{m_d \beta^2} [\beta t + \exp(-\beta t) - 1] \quad (5.4)$$

gegeben. Für kurze Bestrahlungszeiten, im Falle eines sich schnell bewegenden Laserstrahls, ist der Term $\beta t \ll 1$ und die Dämpfung kann in dieser Phase vernachlässigt werden. Die Bewegung in dieser Phase entspricht einer gleichförmig beschleunigten Bewegung. Damit ergeben sich die Lösungen für die Position und Geschwindigkeit zu

$$x(t) = \frac{F_L t^2}{2m_d} \text{ und } v_x(t) = \frac{F_L t}{m_d}. \quad (5.5)$$

In der zweiten Phasen wird das Partikel nicht mehr durch den Laserstrahl beschleunigt. Auf Grund der Neutralgasreibung nimmt die Geschwindigkeit exponentiell nach

$$v_x(t) = \frac{F_L \tau_1}{m_d} \exp[-\beta(t - \tau_1)] \quad (5.6)$$

ab. Die über ein einzelnes Stoßereignis gemittelte quadrierte Geschwindigkeit ergibt sich in der Summe aus

$$\langle v_x(t)^2 \rangle = \frac{1}{\tau_2} \left[\int_0^{\tau_1} \frac{F_L^2 t^2}{m_d^2} dt + \int_{\tau_1}^{\tau_2} \frac{F_L^2 t^2}{m_d^2} \exp[-2\beta(t - \tau_1)] dt \right]. \quad (5.7)$$

Die mittlere Zeit zwischen zwei Bestrahlungsvorgängen ist τ_2 . Mit Gl. (5.7) und der Annahme $\tau_1 \ll \tau_2$ folgt für die kinetische Temperatur

$$T_{\text{kin}} = \frac{F_L^2 \tau_1^2}{4m_d k_B \beta(p) \tau_2} [1 - \exp(-2\beta(p)\tau_2)]. \quad (5.8)$$

Die Schreibweise $\beta(p)$ soll hervorheben, dass der Reibungskoeffizient eine Funktion des Neutralgasdrucks p ist. Die Zeitkonstanten $\tau_{1,2}$ sind die mittlere Bestrahlungszeit und die mittlere Zeit zwischen zwei Bestrahlungsvorgängen und quantifizieren somit die Funktionsweise der Laserheizung. Diese Größen können für das Experiment allerdings lediglich abgeschätzt werden. Für monodisperse Systeme ist die absolute Bestimmung der Laserkraft aus der kinetischen Temperatur daher nicht möglich.

Zweidimensionale binäre Mischungen hingegen sind ideal für eine derartige Messung geeignet. Die beiden Spezies halten sich im gleichen Volumen auf und erfahren durch die Laserheizung Stöße von gleicher Dauer und Stoßrate. Statt der Messung der absoluten Laserkräfte kann daher das Verhältnis dieser Kräfte betrachtet werden. Da in die EPSTEIN-Reibungskoeffizienten das Produkt $a_d \rho_d$ eingeht, und dieses in zweidimensionalen binären Mischungen nahezu gleich ist, fällt der Unterschied dieser Koeffizienten gering aus. Für die hier verwendeten Partikel ist $\beta_{\text{MF}}/\beta_{\text{SiO}_2} \approx 1,03$. Die mittlere Bestrahlungszeit τ_1 und mittlere Zeit zwischen zwei Stoßereignissen τ_2 können für beide Spezies als gleich betrachtet werden. Bei der Verhältnisbildung der kinetischen Temperaturen nach Gl. (5.8) eliminieren sich die Zeitkonstanten $\tau_{1,2}$. Der Ausdruck in eckigen Klammern in Gl. (5.8) kann unter Inkaufnahme eines geringen Fehlers ebenfalls vernachlässigt werden. Die Kraftmessung wird damit unabhängig von der exakten Funktionsweise der Laserheizung. Dies ermöglicht insgesamt eine drastische Vereinfachung des Ausdrucks für das Temperaturverhältnis und man erhält

$$R := \frac{F_{\text{L,MF}}}{F_{\text{L,SiO}_2}} = \sqrt{\frac{T_{\text{kin,MF}}}{T_{\text{kin,SiO}_2}}} \cdot \frac{a_{\text{d,MF}}}{a_{\text{d,SiO}_2}}. \quad (5.9)$$

Ohne zusätzliche Information liefern die Temperaturverhältnisse jedoch keinen Aufschluss über die exakte Komposition der Laserkräfte. In Abschnitt 2.6 wurden der Strahlungsdruck und die photophoretische Kraft als mögliche Komponenten der Laserkraft aufgeführt. Letztere ist eine Funktion der Dichte des das Partikel umgebenden Mediums. In den Experimenten komplexer Plasmen lässt sich dieser Parameter über den Neutralgasdruck einstellen. Es bietet sich für Ergründung der Kraftkomposition eine Variation des Argongasdruckes an. Eine Messung von $R(p)$ ermöglicht eine Aussage, ob eine Druckabhängigkeit der Laserkräfte vorliegt und eine Anpassung des Modells erlaubt zusätzlich eine Messung dieser Kräfte.

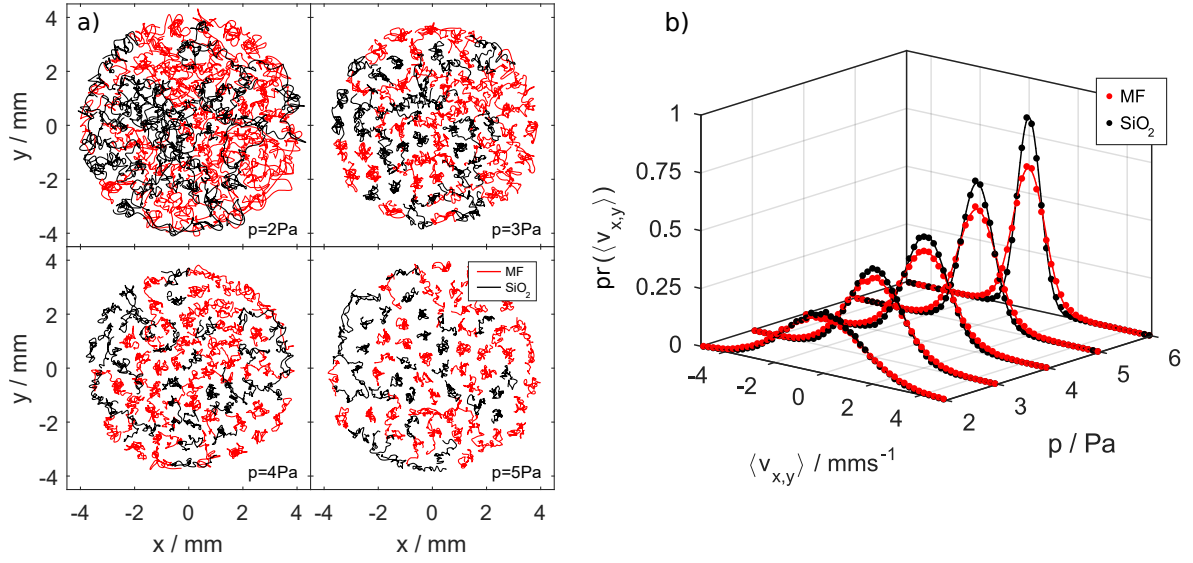


Abbildung 5.1: Heizen einer binären Mischung bei verschiedenen Neutralgasdrücken p . a) Trajektorien eines $N = 76$ Partikel Kristalls mit einem Mischungsverhältnis von $\eta = 0,6$. Bei gleicher Laserleistung nimmt die Partikelbewegung mit steigendem Neutralgasdruck deutlich ab. b) Gegenüberstellung der Geschwindigkeitsverteilungen bei verschiedenen Neutralgasdrücken. Mit zunehmenden Druck nimmt die Abweichung der Verteilungen, und damit der Temperaturunterschied, deutlich zu. Abgedruckt aus [Wieben & Block, Phys. Plasmas **25**, 123705 (2018)] mit Genehmigung von AIP Publishing [276].

5.3 Strahlungsdruck und photophoretische Kraft

Die Messung der Laserkräfte über die kinetischen Temperaturen erfordert die Berücksichtigung zweier zusätzlicher Faktoren. Zum Einen muss die Druckvariation mit ein und dem selben System durchgeführt werden. Eine Veränderung des Drucks wirkt sich auf die Ausdehnung des Plasmavolumens und der Randschicht aus und beeinflusst direkt die Levitationsposition der Partikel. Für kleine Druckänderungen kann die HF-Leistung angepasst werden, um die Levitationspositionen konstant zu halten. Ist dies nicht mehr möglich, so muss bei jedem eingestellten Druck die Laserheizung neu justiert werden. Eine Vergleichbarkeit zu Messungen an anderen Systemen ist auf Grund minimaler Abweichungen in den Entladungsbedingungen und des Strahlenverlaufs nicht zwingend gegeben. Zum anderen gilt das Modell aus Gl. (5.8) für die kinetische Temperatur streng genommen nur für ein einzelnes Partikel. Die Wechselwirkung mit den anderen Partikeln wird nicht berücksichtigt. Um den Einfluss der Kopplung der Partikel zu reduzieren, wird die kinetische Temperatur maximiert und somit der Kopplungsparameter $\Gamma \propto T^{-1}$ minimiert. Dann ist die Laserkraft groß gegen die YUKAWA-Wechselwirkungskraft und der Einfluss der anderen Partikel sollte vernachlässigbar sein. Im Experiment wird dies durch hohe Laserintensitäten erreicht.

Die Systeme werden zunächst nach dem Schema aus Abschnitt 4.5 präpariert und bei verschiedenen Neutralgasdrücken mit der Laserheizung manipuliert. In Abb. 5.1 sind die Trajektorien und Geschwindigkeitsverteilungen eines binären Beispielsystems mit $N = 76$ Partikeln im geheizten Zustand gezeigt. Die MF-Partikel sind in rot und die SiO_2 -Partikel in schwarz dargestellt. Die Trajektorien in 5.1 a) sind jeweils für einen Zeitraum von 3,3s gezeigt. Die Erhöhung des Neutralgasdruckes in den vier Bildern von $p_1 = 2\text{ Pa}$ auf $p_4 = 5\text{ Pa}$ resultiert

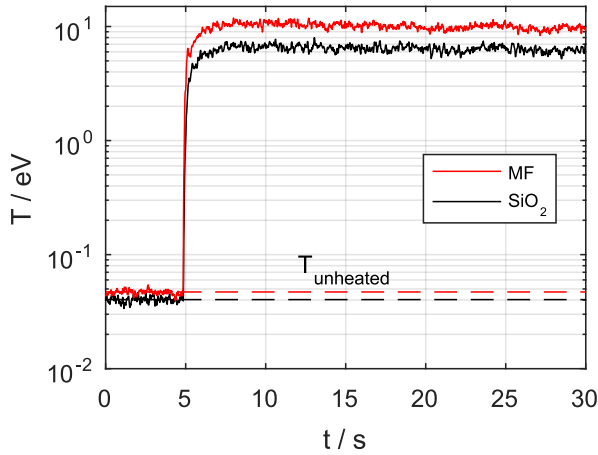


Abbildung 5.2: Zeitlicher Verlauf der kinetischen Temperatur während des Einschaltprozesses der Laserheizung einer Beispielmessung bei $p = 2$ Pa. Bei $t = 5$ s wird die Laserheizung eingeschaltet und das System nimmt zügig eine neue Gleichgewichtstemperatur an. Man beachte die logarithmische Skalierung der Temperaturachse. Die Temperatur im ungeheizten Zustand wird vor der Weiterverarbeitung der Daten subtrahiert, um den Einfluss unbekannter Heizmechanismen zu eliminieren. Abgedruckt aus [Wieben & Block, Phys. Plasmas **25**, 123705 (2018)] mit Genehmigung von AIP Publishing [276].

in einer deutlichen Abnahme der Partikelbewegung. Dies ist auf Grund der erhöhten Reibung zu erwarten. Die Geschwindigkeitsverteilungen in 5.1 b) sind sowohl über zehn Messungen als auch über x - und y -Richtung gemittelt. Die eigentlichen Verteilungen sind als Punkte dargestellt und die durchgehenden Linien sind angepasste Gaußverteilungen. Es zeigt sich eine zunehmende Abweichung der Verteilungen mit zunehmendem Druck, wobei die MF-Spezies stets höhere Standardabweichungen aufweist. Für eine Analyse der Temperaturen müssen die Partikelmassen berücksichtigt werden. Aus der Varianz der Geschwindigkeiten kann über $T_{\text{kin}} = m_d \langle \sigma_v^2 \rangle / k_B$ die kinetische Temperatur bestimmt werden. Der Temperaturverlauf für beide Partikelspezies ist an einer Beispielmessung in Abb. 5.2 gezeigt. Auf der x -Achse ist die Zeit t in Sekunden und auf der y -Achse die kinetische Temperatur in Elektronenvolt aufgetragen. Das System befindet sich im ungeheizten Zustand bei $T_{\text{unheated}} \approx 40$ meV (460 K). Zum Zeitpunkt $t = 5$ s wird die Laserheizung eingeschaltet und die Spezies nehmen separat rasch neue Gleichgewichtstemperaturen im Bereich von 7...10 eV an. Um unbekannte Heizmechanismen sowie einen Temperaturunterschied auf Grund unterschiedlicher Neutralgasreibungskoeffizienten ausschließen zu können, wird im Rest der Analyse die korrigierte Temperatur

$$T_{\text{corr}}^\alpha = T_{\text{kin}}^\alpha - T_{\text{unheated}}^\alpha \quad (5.10)$$

mit $\alpha \in \{\text{MF}, \text{SiO}_2\}$ verwendet.

Die auf diese Weise in der Laserheizung und unter Variation des Neutralgasdruckes ermittelten kinetischen Temperaturen der Spezies sind in Abb. 5.3 a) gezeigt. Hier ist die korrigierte Temperatur T_{corr} in eV über dem Argongasdruck p aufgetragen. Die roten Quadrate sind die Temperaturen der MF-Spezies und die schwarzen Dreiecke die der SiO_2 -Spezies. In den Markern sind Fehlerbalken eingetragen, die der Standardabweichung von zehn aufeinanderfolgenden Messungen entsprechen. Die geringen Fehler zeigen die exzellente Reproduzierbarkeit von Wiederholungsmessungen der kinetischen Temperatur. Die Temperaturen skalieren reziprok mit dem Neutralgasdruck. Auf Grund der erhöhten EPSTEIN-Reibung bei ansteigendem Neutralgasdruck ist eine geringere Temperatur bei diesen Parametern zu erwarten. Dies wird durch die Messungen bestätigt. Für jede Spezies sind jeweils zwei Temperaturmodelle

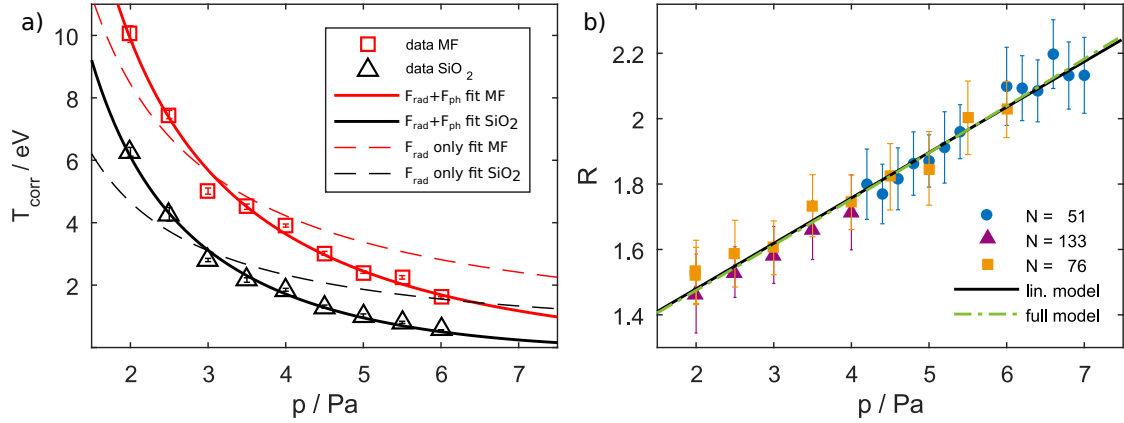


Abbildung 5.3: Ermittelte kinetische Temperaturen und Kräfteverhältnis R bei verschiedenen Neutralgasdrücken p . a) Einzelresultate aus zehn Wiederholungsmessungen am binären $N = 76$ Partikel System. Erwartungsgemäß nimmt die kinetische Temperatur bei konstanter Laserleistung und zunehmender Dämpfung ab. Die durchgezogenen Linien sind Anpassungen des Modells inklusive photophoretischer Kraft und die gestrichelten Linien unter ausschließlicher Verwendung des Strahlungsdrucks. b) Das Verhältnis der Laserkräfte $R = F_{L,MF}/F_{L,SiO_2}$ zeigt für alle Messungen einen vergleichbaren linearen Anstieg mit dem Neutralgasdruck. Aus der Anpassung mit dem linearisierten Modell aus Gl. (5.16) können die Koeffizienten der Kraftkomponenten bestimmt werden. Abgedruckt aus [Wieben & Block, Phys. Plasmas **25**, 123705 (2018)] mit Genehmigung von AIP Publishing [276].

angepasst. Die durchgezogenen Linien entsprechen dem Modell aus Gl. (5.8) unter Verwendung von Gl. (5.1). Die gestrichelten Linien sind Anpassungen mit einem Modell in dem $F_{ph} = 0$ gesetzt wurde.

Falls die photophoretische Kraft vernachlässigbar ist, kann das Modell für die kinetische Temperatur vereinfacht werden und man erhält

$$T_{kin}^{rad}(p) = D \frac{q_{pr}^2}{p} [1 - \exp(-2\beta(p)\tau_2)] , \quad (5.11)$$

wobei alle weiteren Größen in $D = (I\pi a_d \tau_1)^2 v_{th,n} / (32k_B \delta \tau_2 c_0)$ zusammengefasst sind. Man beachte jedoch, dass dieser Ausdruck weiterhin von den Zeitkonstanten $\tau_{1,2}$ abhängt. Das Modell ist eine Funktion der Form $T_{kin}^{rad}(p) \propto (1 - \exp(-p))/p$. Wie in Abb. 5.3 a) zu sehen ist, lässt sich diese Funktion (gestrichelte Linien) mit beliebigen freien Parameter nicht an die Daten anpassen. Lediglich das vollständige Modell mit einem Einfluss von sowohl des Strahlungsdrucks, als auch der photophoretischen Kraft kann den Verlauf der Messdaten sehr gut nachbilden.

Die Anpassung liefert allerdings keine quantitativen Ergebnisse der materialabhängigen Partikeleigenschaften, da weiterhin zu viele unbekannte Parameter in das Modell eingehen. Im Folgenden ist daher das Verhältnis der Temperaturen von Interesse, da es nach Gl. (5.9) proportional zum Kräfteverhältnis R ist. In Abb. 5.3 b) ist R für drei binäre Systeme mit 51, 76 und 133 Partikeln als Funktion des Neutralgasdruckes aufgetragen. Die Messdaten der drei unabhängigen Messungen gehen ohne Versatz ineinander über. Im Rahmen der Fehler kann $R(p)$ in diesem Druckbereich als lineare Funktion vom Druck bezeichnet werden. Daher

	q_{pr}	$\left(\frac{J_1}{k_d}\right)_{\text{lin}} / \left(\frac{\text{Km}}{\text{W}}\right)$	$\left(\frac{J_1}{k_d}\right) / \left(\frac{\text{Km}}{\text{W}}\right)$
MF	$0,94 \pm 0,11$	$-0,07 \pm 0,03$	$-0,07 \pm 0,03$
SiO ₂	$1,14 \pm 0,24$	0	$0,005 \pm 0,005$

Tabelle 5.1: Zusammenfassung der durch Anpassung der Modelle für die Laserkräfte erhaltenen Ergebnisse. Der Wert von q_{pr} für MF wurde von LIU *et al.* übernommen [71]. Die zweite Spalte enthält die Ergebnisse des durch Nullsetzen der photophoretischen Kraft der SiO₂-Spezies linearisierten Modells. Die letzte Spalte enthält die Ergebnisse des vollständigen Modell unter Nutzung des linearisierten Ergebnisses von q_{pr} für die SiO₂-Spezies.

ist eine Linearisierung des Modells von R mit den Ausdrücken für alle Laserkräfte sinnvoll. Abgekürzt lassen sich die Kraft des Strahlungsdrucks F_{rad} und die photophoretische Kraft auch in die Form

$$F_{\text{rad}} = I f_{\alpha} \quad (5.12)$$

$$F_{\text{ph}} = I p g_{\alpha} \quad (5.13)$$

bringen. Die materialabhängigen Größen lassen sich mit den Konstanten in den Koeffizienten $f_{\alpha} = q_{\text{pr},\alpha} \pi a_{\text{d},\alpha}^2 / c_0$ und $g_{\alpha} = J_{1,\alpha} \pi a_{\text{d},\alpha}^2 / (3 k_{\text{d},\alpha} T_{\text{n}})$ zusammenfassen. Unter Ausnutzung von f_{α} und g_{α} aus kann das Verhältnis der Laserkräfte in der Form

$$R(p) = \frac{f_{\text{MF}} + g_{\text{MF}} p}{f_{\text{SiO}_2} + g_{\text{SiO}_2} p} \quad (5.14)$$

geschrieben werden. Die Ableitung des Kräfteverhältnisses R lautet dann

$$\frac{dR}{dp} = \frac{f_{\text{MF}} g_{\text{SiO}_2} - g_{\text{MF}} f_{\text{SiO}_2}}{(f_{\text{SiO}_2} - g_{\text{SiO}_2} p)^2}. \quad (5.15)$$

Der lineare Verlauf in Abb. 5.3 mit $dR/dp = \text{const.}$ kann nur erreicht werden, wenn der Koeffizient für die photophoretische Kraft auf die SiO₂-Partikel g_{SiO_2} klein ist gegen alle anderen Beiträge. Für eine vorläufige Reduktion des Modells sei zunächst $g_{\text{SiO}_2} = 0$ gesetzt. Das linearisierte Kräfteverhältnis ist vollständig ausgeschrieben

$$R \approx \frac{q_{\text{pr, MF}}}{q_{\text{pr, SiO}_2}} \frac{a_{\text{d, MF}}^2}{a_{\text{d, SiO}_2}^2} - \frac{J_{1, \text{MF}} a_{\text{d, MF}}^3 c_0}{3 k_{\text{d, MF}} T_{\text{n}} q_{\text{pr, SiO}_2} a_{\text{d, SiO}_2}^2} \cdot p. \quad (5.16)$$

Durch das Anpassen dieser Geradengleichung an alle Messwerte in Abb. 5.3 lassen sich der y -Achsenabschnitt und die Steigung bestimmen. Mithilfe der bekannten Parameter können dann die weiteren Größen abgeleitet werden. Die aus der Anpassung erhaltenen Ergebnisse für den Strahlungsdruckquerschnitt q_{pr} und dem Verhältnis aus Asymmetriefaktor und Wärmeleitfähigkeit des Partikelmaterials (J_1/k_d) sind in Tabelle 5.1 zusammengefasst. Der Strahlungsdruckquerschnitt der MF-Spezies wurde von BIN LIU *et al.* zu $q_{\text{pr, MF}} = 0,94 \pm 0,11$ bestimmt [71].

5.4 Diskussion der Ergebnisse

Abschließend werden in diesem Kapitel die Fehlerquellen der Methode nacheinander betrachtet und die Plausibilität der erhaltenen Werte überprüft. Die Auswirkung dieser Ergebnisse auf Experimente in monodispersen und binären komplexen Plasmen wird diskutiert.

Fundamental für die Methode ist die Messung der kinetischen Temperatur beider Spezies. Der Fehler der Temperaturmessung setzt sich aus dem Fehler der Varianz der Geschwindigkeiten σ_v^2 und der Unsicherheit der Partikelmassen m_d zusammen. Die Varianz wird über die Anpassung einer Normalverteilung ermittelt. Dem Gesetz der großen Zahlen folgend skaliert der Fehler der ermittelten Varianz offensichtlich umgekehrt proportional mit der Anzahl der Datenpunkte. Eine Fehlerbetrachtung zusätzlicher Parameter kann beispielsweise mithilfe künstlicher Daten durchgeführt werden. Dies können Histogramme normalverteilter Zufallszahlen mit vorgegebener Standardabweichung oder Simulationsdaten mit gezielt eingestellter Temperatur sein. Mithilfe der Kovarianzmatrix lassen sich die Unsicherheiten einzelner Fitparameter ermitteln. Die Anzahl der Histogrammbehälter hat einen vernachlässigbaren Einfluss auf die bestimmten Varianzen. Für 10^4 Datenpunkte liegt der relative Fehler bei $\Delta\sigma_v/\sigma_v \approx 1\%$. Den größeren Einfluss auf den Temperaturfehler hat die Unsicherheit in der Partikelmasse. Der Hersteller gibt die relative Breite der Größenverteilung mit $1 \dots 3\%$ an. Für MF- und SiO_2 -Partikel resultiert dies in relativen Massenunsicherheiten von $\Delta m_d/m_d = 4 \dots 8\%$. Insgesamt ergibt sich für die kinetische Temperatur ein Fehler von $\Delta T_{\text{kin, MF}} = \pm 6\%$ für MF und $\Delta T_{\text{kin, SiO}_2} = \pm 12\%$ für SiO_2 -Partikel. Die Fehler von R in Abb. 5.5 b) wurden aus den statistischen Fehler der Temperaturmessungen und der vom Hersteller angegebenen Unsicherheit in den Partikelgrößen bestimmt (vgl. Gl. (5.9)).

Neben den in die Berechnung der Temperatur eingehenden Größen können auch dynamische Phänomene im Partikelensemble selbst und eine unzureichende Justage der Laserheizung die Geschwindigkeitsverteilungen und somit auch die Temperaturmessung beeinflussen. Levitieren die Partikel nicht exakt auf einer Höhe, so kann die Wechselwirkung der tieferen Partikel mit den Ion Wakes der höheren Partikel auf Grund dieser zusätzlichen Wechselwirkung einen zusätzlich Heizmechanismus darstellen [175]. Die höher levitierenden Partikel weisen dabei eine höhere kinetische Temperatur als die Partikel der unteren Ebene auf. Der Temperaturunterschied skaliert mit dem Höhenunterschied. In ihrer Arbeit zeigen IVLEV *et al.* zweilagige Systeme mit einem mittleren Höhenunterschied von $100 \dots 150 \mu\text{m}$. Die in dieser Arbeit verwendeten Systeme zeigen eine gesamte vertikale Ausdehnung (beide Spezies) von $50 \mu\text{m}$ auf. Daher, und durch die Verwendung der korrigierten Temperaturen T_{corr} , wird der Einfluss eines derartiger Heizmechanismus ausgeschlossen. Aus dem selben Grund scheidet ein Unterschied in der Laserintensität für die beiden Spezies aus, der durch eine unterschiedlich große horizontale Komponente der Laserkraft auftreten würde. Auf Grund des hohen Abstands der Galvanometerspiegel von den Partikeln (20 cm) müsste der Unterschied in den Levitationshöhen mehrere Millimeter betragen, um einen Einfluss auf das Temperaturverhältnis zu haben. Zusätzliche Heizmechanismen, z. B. durch Instabilitäten wie die Mode Coupling Instability wurden zum einen nicht beobachtet und werden zum anderen durch die Subtraktion des Temperaturoffsets aus der Auswertung eliminiert.

Im Experiment wurden die kinetischen Temperaturen unter Variation des Neutralgasdrucks ermittelt und die Ergebnisse durch Anpassung eines analytischen Modells gewonnen. Stimmen die Annahmen des Modells nicht mit der Situation im Experiment überein, so kann dies als systematischer Fehler die Aussagekraft der Messergebnisse beeinträchtigen. Es ist daher notwendig die Annahmen dieses Modells zu diskutieren und damit die Gültigkeit der Messwerte zu begründen. Das simplifizierte Modell der kinetischen Temperatur stammt von WOLTER und MELZER [224]. Zwei der Annahmen lassen sich durch einfache Argumentationen rechtfertigen. Das Modell betrachtet einen einzelnen Laserstrahl und behandelt das Szenario als vollständig eindimensionalen Fall. Liegen im Experiment mehrere Laserstrahlen vor, so verringert sich lediglich die mittlere Zeit zwischen zwei Stößen mit dem Laserstrahl τ_2 . Die Einführung einer zweiten Laserachse reduziert τ_2 weiter. Die Richtung der Stöße ist unerheblich, solange diese mit hoher Frequenz und isotrop erfolgen. Die Erweiterung auf mehrere Laserstrahlen und -achsen wird daher bereits in der Größe τ_2 berücksichtigt.

Des Weiteren geht das Modell von einem ruhenden, nicht-rotierenden Partikel aus. Tatsächlich ist das Partikel jedoch in Bewegung und wird sich ebenfalls in Rotation befinden. Für den Strahlungsdruck ist dies unerheblich, solange das Partikel sphärisch ist. Die sphärische Form, sowie die Isotropie und Homogenität des Partikelmaterials sind ohnehin Annahmen der LORENTZ-MIE-Theorie [193]. Für die photophoretische Kraft hingegen ergeben sich zusätzliche Fälle, sofern $J_1 \neq 0$ ist. Zunächst muss jedoch die Zeitskala für den Wärmeübertrag in Betracht gezogen werden. Auf Grund der geringen Wärmekapazität der Mikropartikel selbst, sollte eine Bestrahlung mit intensiven Laserlicht zu einem nahezu instantanem Wärmeübertrag führen. Dies gilt nur unter der Annahme, dass das Partikel Licht der verwendeten Wellenlänge absorbiert. In jedem Fall muss sich ein Temperaturgradient ausbilden können, damit J_1 nicht verschwindet. Eine photophoretische Kraft kann in dem Szenario einer Laserheizung mit sehr kurzen Bestrahlungszeiten nur dann einen Beitrag leisten, wenn ein nennenswerter Wärmeübertrag stattfinden kann. Ein Ausdruck für die Zeitskala des Wärmeübertrags durch Bestrahlung wurde von KRAUSS und WURM zu $\tau_{\text{heat}} = \rho_d a_d^2 c_m / k_d$ formuliert, wobei c_m die spezifische Wärmekapazität des Partikelmaterials ist [277]. Die spezifischen Wärmekapazitäten und Wärmeleitfähigkeiten sind lediglich für makroskopische Körper tabelliert. Während für SiO_2 fast alle Eigenschaften in der Literatur verfügbar sind, müssen für MF teilweise die Werte von ähnlichen Materialien (Kunststoffe) herangezogen werden. Die erhältlichen Literaturwerte sind $c_{m,\text{SiO}_2} \approx 750 \text{ J}/(\text{kg K})$ und $c_{m,\text{plastics}} \approx 1200 \text{ J}/(\text{kg K})$ sowie $k_{d,\text{MF}} = 0,4 \text{ WK}^{-1}\text{m}^{-1}$ und $k_{d,\text{SiO}_2} = 1,4 \text{ WK}^{-1}\text{m}^{-1}$ [278–280]. Für einen Vergleich kann die mittlere Bestrahlungszeit eines einzelnen Partikels τ_1 aus der mittleren Rasterfrequenz und den Abmessungen der Plasmakristalle grob zu $\tau_1 \approx 50 \mu\text{s}$ abgeschätzt werden. Die Zeitskalen für den Wärmeübertrag ergeben sich zu $\tau_{\text{heat},\text{MF}} \approx 100 \mu\text{s}$ und $\tau_{\text{heat},\text{SiO}_2} \approx 14 \mu\text{s}$. Der Algorithmus für eine stochastische Bewegung der Laserstrahlen bewirkt eine Variation der Rasterfrequenz des Strahls. Wie in Abschnitt 3.4 erläutert, sind die Rasterfrequenzen gleichverteilt, hohe Frequenz treten mit gleicher Wahrscheinlichkeit wie niedrige auf. Diese Verteilung findet sich in der Bestrahlungszeit, der Stoßdauer, wieder. Die Stoßrate ausschließlich langer Stöße ist nach wie vor groß gegen ω_d und somit finden ausreichend Stöße statt, die die Anforderungen für einen vollständigen Wärmeübertrag erfüllen.

Betrachtet man ein rotierendes Partikel mit einer Rotationsfrequenz $\omega_{\text{rot,d}}$, so ergeben sich zwei Fälle: Ist $\omega_{\text{rot,d}}^{-1} \gg \tau_1$, so entspricht die Situation näherungsweise der eines ruhendes Partikels und das Modell ist ohne Einschränkungen anwendbar. Entspricht die Zeitskala der Rotation der Bestrahlungsdauer $\omega_{\text{rot,d}}^{-1} \lesssim \tau_1$, so wird die Oberfläche des Partikels großflächig erhitzt. Die für die photophoretische Kraft notwendige inhomogene Erwärmung der Oberfläche findet nicht statt und die Kraftwirkung wird reduziert. Für eine Rotation um 180° innerhalb der oben abgeschätzten Bestrahlungszeit $\tau_1 \approx 50 \mu\text{s}$ wäre eine Rotationsfrequenz von $\omega_{\text{rot,d}} \approx 6,3 \times 10^4 \text{ s}^{-1}$ notwendig. Einen Ausdruck für die durch BROWNSche Bewegung getriebene Rotation eines Partikels stammt ebenfalls von KRAUSS und WURM [277]. Demnach errechnet sich die halbe Periodendauer der Rotation aus $\tau_{\text{rot}}(180^\circ) = \sqrt{8\rho_d \pi^3 a_d^5 / (45k_B T_n)}$. Für die Experimente dieser Arbeit erhält man $\tau_{\text{rot}}(180^\circ) \approx 80 \text{ ms}$ und damit einen um drei Größenordnungen höheren Wert als die Bestrahlungszeit. Eine zusätzliche Anregung der Rotation durch die Laserstrahlung ist nicht auszuschließen, allerdings ist der Querschnitt des Laserstrahls mit $\pi a_{\text{Laser}}^2 \approx 0,025 \text{ mm}^2$ größer als der Querschnitt des Partikels, so dass eine exzentrisch angetriebene Rotation gering sein sollte. Auf Grund der durchgeführten Abschätzungen ist eine Verringerung der photophoretischen Kraft durch die Rotation des Partikels vernachlässigbar. Der Einfluss der Partikelrotation auf die photophoretische Kraft wurde ebenfalls an Eispartikeln gemessen [281]. Bei den Eispartikeln handelt es sich zwar um nicht-sphärische Partikel, die sich entlang der optischen Achse ausrichten, jedoch wird auch in diesen Experimenten die photophoretische Kraft nicht messbar reduziert.

Die erhaltenen Werte von q_{pr} und J_1/k_d wurden unter Verwendung des Strahlungsdruckquerschnitts der MF-Spezies von BIN LIU *et al.* berechnet. Es muss daher zum einen die Verwendung dieses Wertes legitimiert und zum anderen eine Einschätzung der Genauigkeit des Wertes selbst erfolgen. In ihren Experimenten haben BIN LIU *et al.* ihren Laser in einem Modus betrieben, bei dem simultan Licht mit Wellenlängen aus dem Bereich $\lambda = 454,5 \dots 514,5 \text{ nm}$ ausgesendet wird. Zusätzlich haben sie Partikel verschiedener Größe verwendet. Die Idee hinter diesem Vorgehen war die Ermittlung eines mittleren, wellenlängen- und partikelradien-unabhängigen „mittleren Strahlungsdruckquerschnitts“. Um diesen Wert für die in dieser Arbeit durchgeführte Auswertung verwenden zu können, müssen die Größenparameter x , vielmehr noch die Streuquerschnitte q_{sca} , der MF-Partikel dieser Arbeit mit den von LIU *et al.* vergleichbar sein. Der Radius der MF-Partikel wird nach der Präparation auf $a_{\text{d,MF}} = 4,43 \mu\text{m}$ abgeschätzt (s. Kap. 4). Dann sind $x_{\text{MF,Liu}}/x_{\text{MF}} = 55,5/52,3 \approx 1,06$ und $q_{\text{sca,MF,Liu}}/q_{\text{sca,MF}} \approx 1,02$ was einer guten Übereinstimmung entspricht. Die Experimente von LIU wurden bei einem sehr niedrigen Druck von $1,8 \text{ Pa}$ durchgeführt. Eine photophoretische Kraftkomponente ist hier nicht vollständig auszuschließen, jedoch sollte der Einfluss auf die Ergebnisse gering sein. Mithilfe der in Ref. [71] angegebenen Kräfte kann unter Verwendung eines sinnvollen Intervalls für das Absorptionsvermögen dieser Einfluss abgeschätzt werden. Die Abschätzung ergibt, dass eine nicht berücksichtigte photophoretische Kraft zu einer negativen Verschiebung des Strahlungsdruckquerschnitts von $\Delta q_{\text{pr,MF}} = -0,2$ führen würde. Dies entspricht dem Zweifachen des von LIU *et al.* angegebenen Fehlers.

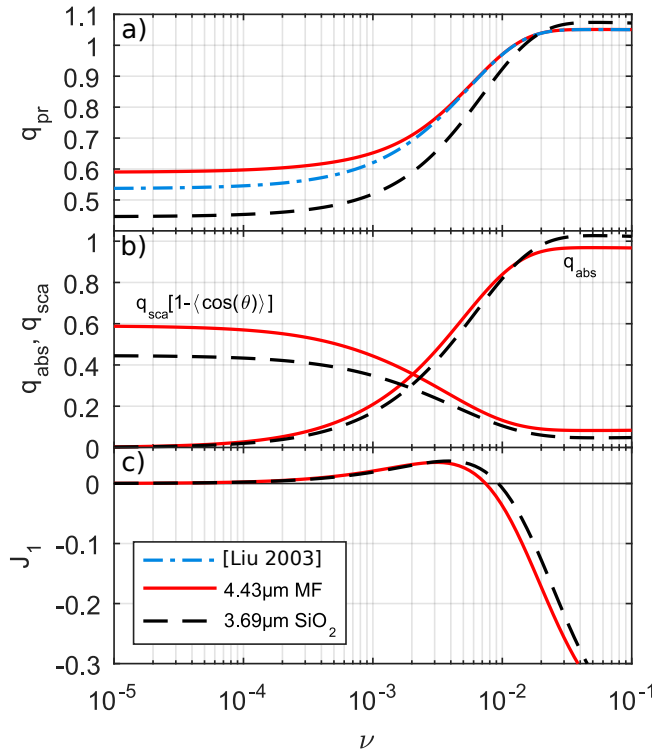


Abbildung 5.4: Berechnungen der materialabhängigen Koeffizienten der Laserkraft als Funktion des Absorptionsvermögens ν . a) Strahlungsdruckquerschnitt der in dieser Arbeit und von LIU *et al.* [71] verwendeten Partikelspezies. Für $\nu > 2 \times 10^{-3}$ stimmt q_{pr} der MF-Spezies überein. b) Komponenten des Strahlungsdruckquerschnitts. Anhand dieser Kurven können Regime schwacher und starker Absorption abgeschätzt werden. Ab $\nu = 2 \times 10^{-3}$ überwiegt die Absorption. c) Asymmetriefaktor J_1 der photophoretischen Kraft. Für kleine ν verschwindet J_1 , wird dann positiv (negative photophoretische Kraft) und ändert schließlich für $\nu > 10^{-2}$ das Vorzeichen (positive photophoretische Kraft). Abgedruckt aus [Wieben & Block, Phys. Plasmas **25**, 123705 (2018)] mit Genehmigung von AIP Publishing [276].

Die Messergebnisse können einigen Konsistenzprüfungen unterzogen werden, abhängig davon, welche Literaturwerte genau vorliegen. Für den Quotienten aus Asymmetriefaktor J_1 und Wärmeleitfähigkeit k_d erhält man für MF den Wert $J_1/k_d = 0,07 \pm 0,03$. Somit ergibt sich eine endliche und positive photophoretische Kraft für die MF-Spezies. Die Verwendung des vollständigen Modells ermöglicht auch die Ermittlung eines Wertes für die SiO_2 -Spezies, allerdings ist der Fehler sehr groß ($\sim 100\%$) und damit keine Aussage möglich. Eine photophoretische Kraft für die SiO_2 -Spezies ist im Rahmen der Fehler nicht detektierbar. Messungen von VON BORSTEL *et al.* an SiO_2 -Agglomeraten mit Größen im Bereich von $20 \dots 200 \mu\text{m}$ zeigen ebenfalls lediglich eine geringe positive und negative Photophorese [215]. Aus dem Achsenabschnitt des linearisierten Modells lässt sich allerdings der Strahlungsdruckquerschnitt für SiO_2 zu $q_{pr,\text{SiO}_2} = 1,14 \pm 0,24$ bestimmen. In Abb. 5.4 a) sind Berechnungen des Strahlungsdruckquerschnitts q_{pr} für die hier verwendeten Partikel und ein gemittelt *Pseudopartikel*, das einen Vergleich mit den Messungen von LIU *et al.* ermöglicht, gezeigt. Die Daten sind als Funktion des Absorptionsvermögens ν halblogarithmisch dargestellt. Der Strahlungsdruckquerschnitt nimmt Werte im Bereich $0,5 < q_{pr} < 1$ an. Mit $q_{pr,\text{MF}}$ von LIU *et al.* kann aus der Grafik zunächst das Absorptionsvermögen der MF-Spezies ermittelt werden, da dieses eine Materialeigenschaft ist und die Partikel vom gleichen Hersteller stammen. Man erhält $\nu_{\text{MF}} \approx 8 \times 10^{-3}$. Ein Vergleich des ermittelten q_{pr,SiO_2} mit der Theorie zeigt eine leichte Abweichung zum erwartenden Wertebereich, da sich für diese Parameter ein maximaler Strahlungsdruckquerschnitt von 1,05 berechnet. Ohne eine zusätzliche Messung sind hier jedoch keine weiteren Aussagen möglich.

In Abb. 5.4 b) sind zusätzlich noch die Komponenten von q_{pr} , der Absorptionsquerschnitt q_{abs} und der Streuquerschnitt q_{sca} multipliziert mit dem Asymmetrieparameter $\langle \cos \theta \rangle$ gezeigt. An Hand dieser Grafik lassen sich grob die Regime hoher und niedriger Absorption abgrenzen. Für $\nu < 10^{-4}$ kann die Absorption der Partikel vernachlässigt werden und ein realer Brechungsindex ist ausreichend. Bei $\nu \approx 2 \times 10^{-3}$ tragen sowohl Streuung als auch Absorption gleichermaßen zum Strahlungsdruck bei. Ab $\nu > 5 \times 10^{-3}$ können die Partikel als überwiegend absorbierend bezeichnet werden.

Die Wärmeleitfähigkeiten des Partikelmaterials sind zumindest für ausgedehnte Festkörper ausreichend tabelliert. Unter der Annahme, dass diese Werte auch für Mikropartikel gelten, können diese für Konsistenzprüfungen der Messergebnisse verwendet werden. Mithilfe von Abb. 5.4 a) und c) sowie $q_{\text{pr, MF}}$ lässt sich der Asymmetriefaktor zu $J_{1, \text{MF}} = -0,015 \pm 0,002$ bestimmen. Aus dem Verhältnis J_1/k_{d} der MF-Spezies ergibt sich eine gemessene Wärmeleitfähigkeit von $k_{\text{d, MF}} = 0,22 \pm 0,11 \text{ WK}^{-1}\text{m}^{-1}$, die im Rahmen des Fehlers dicht an dem Literaturwert liegt. Für die SiO_2 -Spezies liegt keine komplementäre Messung des Strahlungsdruckquerschnitts vor. Allerdings kann von dem Literaturwert der Wärmeleitfähigkeit ausgehend eine Konsistenzprüfung durchgeführt werden. Mit dem Ergebnis der Anpassung und $k_{\text{d, SiO}_2} = 1,4 \text{ WK}^{-1}\text{m}^{-1}$ erhält man den Asymmetrieparameter von $J_{1, \text{SiO}_2} = 0,007 \pm 0,007$. In Abb. 5.4 lässt ich damit unter Vorbehalt und auf Grund des großen Fehlers auf ein Absorptionsvermögen von $\nu_{\text{SiO}_2} \approx 9 \times 10^{-3}$ und einen Strahlungsdruckquerschnitt von $q_{\text{pr, SiO}_2} \approx 0,9$ schließen.

Trotz der großen Fehler für die SiO_2 -Spezies ergeben die erhaltenen Werte zusammen mit den Wärmeleitfähigkeiten der Partikelmaterialien ein konsistentes Bild. Lichtstreuexperimente an vergleichbaren Partikeln, die eine Größenbestimmung mithilfe einer Anpassung der LORENTZ-MIE-Theorie ermöglichen, deuten tendenziell auf geringere Absorptionsvermögen ν hin. Die Methoden zur Anpassung der Theorie an die Messpunkte ist allerdings sehr komplex und wenig sensitiv auf das Absorptionsvermögen. Der Bereich aus diesen Experimenten erhaltener Werte ist $\nu = 10^{-4} \dots 10^{-2}$.

Komplementär wurde eine Konsistenzprüfung über eine Messung der Laserintensität im Zentrum des Plasmakammer bei vergleichbaren Parametern mit einem THORLABS BEAM PROFILER durchgeführt. Die aus dieser Messung erhaltene mittlere Laserintensität im Dauerstrichbetrieb ist $I = (8 \pm 1) \times 10^7 \text{ W/m}^2$. Zusammen mit der abgeschätzten Bestrahlungszeit ergeben unter Verwendung von Gl. (5.8) kinetische Temperaturen von der selben Größenordnung wie im Experiment.

Die erzielten Ergebnisse für die Koeffizienten können abschließend in die Ausdrücke für den Strahlungsdruck und die photophoretische Kraft der Gl. (2.35) und Gl. (2.44) eingesetzt werden, um die Größenordnung der Kräfte mit der Literatur zu vergleichen. In Abb. 5.5 sind die Kräfte für beide Partikelspezies als Funktion des Neutralgasdrucks aufgetragen. Die Werte für den Strahlungsdruck sind demnach als horizontale Linien eingezeichnet, da keine Abhängigkeit vom Neutralgasdruck besteht. Für die MF-Spezies steigt die photophoretische Komponente erwartungsgemäß linear mit dem Neutralgasdruck an, bei $p = 5 \text{ Pa}$ ist der Betrag bereits halb so groß, ab 10 Pa wird der Strahlungsdruck übertroffen. Demnach ist der Einfluss der photophoretischen Kraft für die weit verbreiteten MF-Partikel nicht zu vernachlässigen.

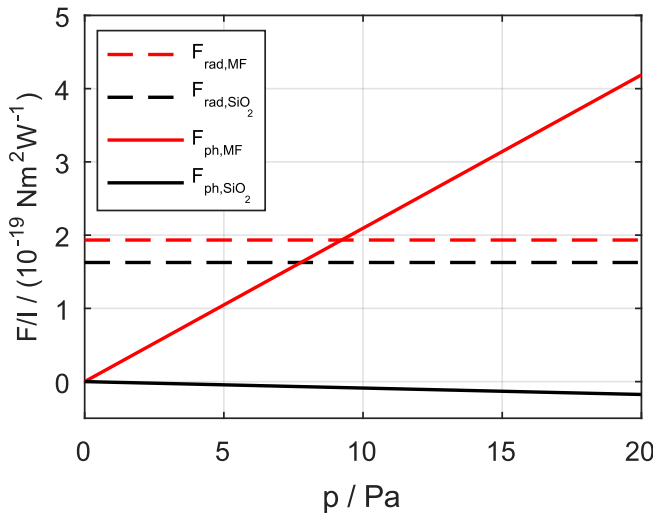


Abbildung 5.5: Mithilfe der Ergebnisse aus Tab. 5.1 berechneter Strahlungsdruck und photophoretische Kraft als Funktion des Neutralgasdrucks p . Die Kräfte sind mit der Laserintensität I normiert aufgetragen, um einen Vergleich mit Liu *et al.* [71] zu ermöglichen. Abgedruckt aus [Wieben & Block, Phys. Plasmas **25**, 123705 (2018)] mit Genehmigung von AIP Publishing [276].

Die in diesem Kapitel vorgestellten Ergebnisse sind nicht nur für Experimente in komplexen Plasmen, sondern auch für andere Felder, die vergleichbare Forschungspartikel mit Lasern manipulieren, von Bedeutung. Die Aufschlüsselung der Laserkraft in ihre Komponenten war nur unter Verwendung von binären Mischungen durchführbar.

Zuletzt soll die zu Beginn dieses Kapitels gestellte Frage, inwiefern unterschiedliche Laserkräfte die Manipulation von binären Mischungen mit Lasern beeinflusst, beantwortet werden. Dynamische Anregungen werden in der Regel bei niedrigen Neutralgasdrücken von $p < 2 \text{ Pa}$ durchgeführt, um die Propagation von Wellen in dem Kristall zu erlauben. In diesem Druckbereich dominiert der Strahlungsdruck und die Laserkräfte unterscheiden sich im gleichen Verhältnis wie die Querschnitte πa_d^2 . Experimente zu Phasenübergängen in binären Mischungen ließen sich ebenfalls auf diese Weise bei geringer Dämpfung durchführen. Da für beide Spezies $q_{\text{pr}} \approx 1$ ist, unterscheidet sich der Strahlungsdruck auf die Partikel um den Faktor $(a_{d,1}/a_{d,2})^2$. Vermutlich lässt sich jedoch eine Partikelkombination und ein Druckbereich finden, bei dem sich Strahlungsdruck und photophoretische Kraft so einstellen, dass die Laserkräfte auf beide Partikel gleich sind. Andererseits könnten verschiedene Laserkräfte ausgenutzt werden, um die Entmischung binärer Systeme extern zu treiben.

Der Zustand bei höheren Neutralgasdrücken stellt tatsächlich ein sehr interessantes thermodynamisches System dar. Beide Teilsysteme sind mit Partikeln der gleichen Spezies im thermodynamischen Gleichgewicht mit dem durch die Laserheizung verursachten Wärmebad. Dieses hängt wiederum für jede Spezies von den Partikeleigenschaften ab. Auf diese Weise kann ein Zustand erzeugt werden, bei dem sich zwei Spezies mit unterschiedlichen Temperaturen im gleichen Volumen aufhalten. Zusätzlich kann der Temperaturunterschied über den Neutralgasdruck eingestellt werden. Durch das Abschalten der Laserheizung relaxiert das Gesamtsystem in einen zweiten Zustand, in dem sich beide Partikelspezies nahezu im thermodynamischen Gleichgewicht mit dem Neutralgashintergrund befinden. Dieses Szenario ist prädestiniert für Experimente zum thermodynamischen Verhalten finiter Systeme und Gegenstand des folgenden Kapitels.

6 | Thermodynamik binärer komplexer Plasmen

Die Staubpartikel in einem Plasma erfahren Stöße mit den schnellen Atomen des Hintergrundgases und vollführen dadurch eine BROWNSche Bewegung. Gleichzeitig stellt die Relativbewegung zu diesem Medium einen Reibungsmechanismus dar. Für monodisperse Systeme im Plasmavolumen stellt sich ein thermodynamisches Gleichgewicht ein [282]. Für binäre Mischungen in der Randschicht muss das prinzipiell nicht so sein. Zunächst erfahren zwei Partikelspezies unterschiedlicher Größe eine ebenso unterschiedliche Reibungskraft (vgl. Kap. 2.4). Nach dem Fluktuations-Dissipations-Theorem wird sich im Gleichgewicht eine zur Reibungskraft proportionale Temperatur einstellen [246]. Zusätzlich werden die Partikel in der höchst anisotropen Umgebung der Plasmarandschicht eingefangen. Die Wechselwirkung mit dem Ion Wake anderer Partikel, einer positiven Raumladungszone unterhalb der Partikel, kann einen Heizmechanismus darstellen [175]. Ein weiterer Heizmechanismus wird durch die Fluktuation der Partikelladung verursacht [127, 271, 283, 284]. Auch dieser Mechanismus skaliert mit dem Partikelradius [285]. Wie diese Überlegungen zeigen, können sich bei Zugabe einer zweiten Spezies die thermodynamischen Eigenschaften komplexer Plasmen verändern. In diesem Kapitel soll die Auswirkung auf die Thermodynamik komplexer Plasmen beim Übergang von Ein- zu Zweikomponentensystemen anhand zweier Phänomene untersucht werden: Die mit einer Wärmeänderung einhergehenden Entropieänderung nach Clausius und die Endlastigkeit der Ränder der Geschwindigkeitsverteilungen.

Wie in Kapitel 5 gezeigt, erlaubt die Laserheizung binärer Mischungen aus Melaminformaldehyd- (MF-) und Siliziumdioxid- (SiO_2 -)Partikeln die Erzeugung eines Zustands, in dem beide Partikelspezies unterschiedliche kinetische Temperaturen annehmen. Die Ursache für diesen Effekt konnte als zusätzliche photophoretische Kraft auf die MF-Spezies identifiziert werden, die die Bilanz der Manipulationskräfte maßgeblich beeinflusst. Ohne Laserheizung stimmen die Temperaturen beider Spezies nahezu überein. Dieses außergewöhnliche Szenario erinnert an ein weit verbreitetes Gedankenexperiment zur Temperaturangleichung zweier Körper [286–288]. Zu Beginn sind die Körper thermisch isoliert und besitzen unterschiedliche Temperaturen. Nachdem sie in Kontakt gebracht wurden stellt sich eine neue mittlere Temperatur ein, die Mischtemperatur. Der Formalismus unter Verwendung der Entropieänderung nach CLAUSIUS kann auf die Situation binärer Mischungen in einer Laserheizung ohne Einschränkung angewendet werden. Komplexe Plasmen eignen sich als stark gekoppeltes Modellsystem ideal für eine derartige Messung, da die Systeme oft transparent, sowie von geringer

Teilchenzahl sind und der Phasenraum somit vollständig bestimmbar ist. Für monodisperse Systeme kann der Formalismus ebenfalls verwendet und die Experimente mit einer einzelnen Staubkomponente für einen Vergleich mit binären Mischungen herangezogen werden.

Im zweiten Teil dieses Kapitels werden die Ränder der Geschwindigkeitsverteilungen näher untersucht. Hierfür werden zunächst Nichtgleichgewichtsphänomene in komplexen Plasmen und deren Einfluss auf die Verteilungsfunktionen betrachtet. Ein besonderer Fokus wird auf den Unterschied zwischen gaußscher und nicht-gaußscher Statistik gelegt. Mit einem robusten Maß für die Gewichtung der Ränder einer Verteilung werden sowohl monodisperse als auch binäre Systeme untersucht und die Ergebnisse verglichen. Abschließend werden die Erkenntnisse dieses Kapitels in einem Fazit zusammengefasst.

6.1 Entropieänderung nach Clausius

Im ersten Teil dieses Kapitels soll die mit einer Wärmeänderung einhergehende Entropieänderungen in monodispersen und binären komplexen Plasmen bestimmt werden [289]. Die Entropieänderung dS eines Systems bei der Temperatur T ist über das Integral

$$dS = \oint \frac{\delta Q}{T} \quad (6.1)$$

mit der Wärmeänderung δQ verknüpft. Dieser Zusammenhang wird im Rest der Arbeit als „CLAUSIUSrelation“ bezeichnet. Ursprünglich wurde diese Relation 1862 für thermodynamische Systeme wie Wärmepumpen und die dort ablaufenden Kreisprozesse von RUDOLF CLAUSIUS aufgestellt. Sie ist jedoch eine allgemeingültige Repräsentation des zweiten Hauptsatzes der Thermodynamik und auf beliebige thermodynamische Systeme anwendbar, sofern diese Wärme mit ihrer Umgebung austauschen. CLAUSIUS war einer der Pioniere der statistischen Physik und auch für die Namensgebung der Entropie verantwortlich [290]. Die Entropieänderung beim Übergang von einem Zustand A in einen Zustand B ergibt sich unter Verwendung der Wärmeänderung $\delta Q = C dT$ zu

$$\Delta S = S_B - S_A = \int_A^B \frac{\delta Q}{T} = C \int_A^B \frac{dT}{T} = C \ln \left(\frac{T_B}{T_A} \right). \quad (6.2)$$

Die Proportionalitätskonstante ist die Wärmekapazität C . Durch die Allgemeingültigkeit der CLAUSIUSrelation kann das Experiment mit Systemen unterschiedlicher Kompositionen durchgeführt werden. Die Zustände unterschiedlicher Temperatur lassen sich im Experiment mithilfe der in Kap. 3.4 und Kap. 5 vorgestellten Laserheizung realisieren. Um die CLAUSIUSrelation nachzuvollziehen verbleiben also die Entropieänderung ΔS und die Wärmekapazität C . Da die Entropie keine intuitive Größe ist, hat ein absoluter Wert der Entropieänderung eine eingeschränkte Aussagekraft. Erst in einer Bilanzrechnung der Entropiebeiträge aller Komponenten des komplizierten Gesamtsystems kann eine Aussage getroffen werden. Für die Wärmekapazität hingegen kann von dem DULONG-PETIT-Gesetz ausgegangen werden [291, 292]. Für eine Beurteilung der Entropiemessung mithilfe des Phasenraums wird und Verwendung von

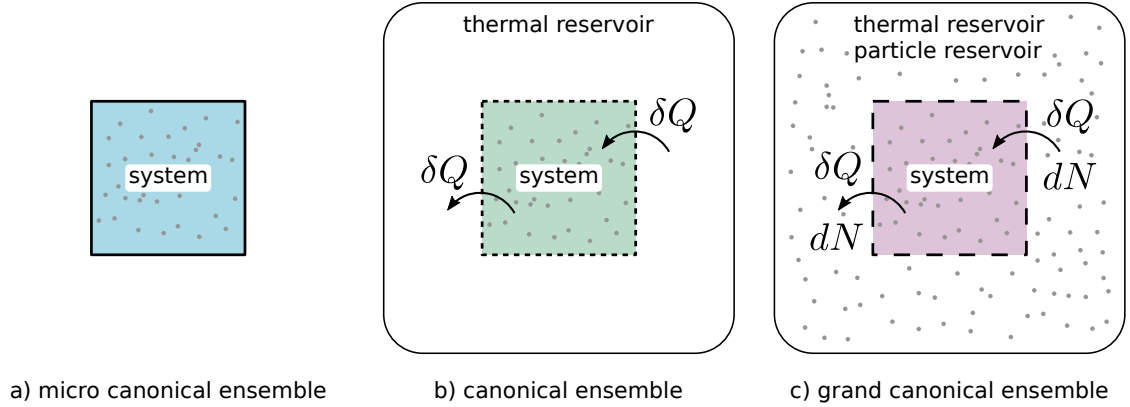


Abbildung 6.1: Übersicht über die statistischen Ensembles. a) Das mikrokanonische Ensemble ist ein abgeschlossenes, thermisch isoliertes System. b) Das kanonische Ensemble beschreibt ein mikrokanonisches Ensemble, dass sich nun in einem Wärmebad befindet und über die Zu- und Abfuhr von Wärme δQ Energie mit diesem austauschen kann. c) Das großkanonische Ensemble erlaubt zusätzlich den Austausch von Teilchen zwischen dem System und dem Wärmebad, dass nun zusätzlich als Teilchenreservoir fungiert.

Gl. (6.2) die Wärmekapazität über

$$C = \frac{\Delta S}{\ln(T_B/T_A)} \quad (6.3)$$

im Experiment bestimmt und mit der DULONG-PETIT-Wärmekapazität verglichen. In den folgenden Abschnitten werden die für die Durchführung und das Verständnis der Methode benötigten Grundlagen eingeführt.

6.1.1 Thermodynamische Ensembles, Entropie und Wärmekapazität

Zur Einordnung komplexer Plasmen in den Kanon der thermodynamischen Ensembles und zur Erläuterung des Entropiebegriffs sollen in diesem Abschnitt die verschiedenen Ensemblebeschreibungen rekapituliert werden. Der Inhalt dieses Abschnitts ist der Standardliteratur der statistischen Physik entnommen [293, 288].

Die thermodynamischen Ensembles sind in Abb. 6.1 skizziert. Ein thermisch isoliertes, d -dimensionales System aus N Teilchen mit $f = dN$ Freiheitsgraden und konstanter Energie wird als mikrokanonisches Ensemble bezeichnet (a). Das System ist vollständig durch den Phasenraum $\{\mathbf{q}_1 \dots \mathbf{q}_N, \mathbf{p}_1 \dots \mathbf{p}_N\}$ beschrieben, der durch die generalisierten Koordinaten \mathbf{q} und Impulse \mathbf{p} aufgespannt wird. Ein mikrokanonisches Ensemble kann weder Wärme, noch Teilchen mit der Umgebung austauschen. Bringt man dieses System in ein Wärmebad ein und erlaubt den Austausch von Wärme mit diesem, so wird das Gesamtsystem als kanonisches Ensemble bezeichnet (b). Dieses hat nun eine konstante Temperatur, nämlich die des Wärmebades, und eine fluktuierende Gesamtenergie. Erlaubt man nun zusätzlich noch den Austausch von Teilchen zwischen dem System und dem Wärmebad, so liegt ein großkanonisches Ensemble vor (c). Letzteres spielt für die Experimente komplexer Plasmen in dieser Arbeit keine weitere Rolle.

In komplexen Plasmen wird dem System aus Staubpartikeln Energie zugeführt, z. B. durch Stöße mit schnellen Neutralgasatomen, der Laserheizung oder anderen Heizmechanismen. Auf der anderen Seite wird Energie in Form von Reibung mit dem Neutralgas dissipiert. Sind die Stöße mit den Gasatomen hinreichend häufig, so ergibt sich nach dem Fluktuations-Dissipations-Theorem ein Gleichgewicht zwischen der durch Reibung dissipierten und durch Stöße einbrachten Energie [246]. Im Gleichgewicht und ohne zusätzliche Störungen weist ein derartiges System aus Staubpartikeln in der Regel eine MAXWELL-BOLTZMANN Geschwindigkeitsverteilung auf und erlaubt eine Temperaturbestimmung in diesen Systemen. Offensichtlich befinden sich die Staubpartikel also in einem Wärmebad, dass durch den Neutralgashintergrund, die Laserheizung oder andere Heizmechanismen bereitgestellt wird. Daher entsprechen komplexe Plasmen der Beschreibung eines kanonischen Ensembles.

Entropie

Die Entropie ist eine zentrale Zustandsgröße der statistischen Physik, die im Wesentlichen mit der Anzahl der einnehmbaren Zustände eines Systems verknüpft ist. Sie wird daher auch als Maß für die Ordnung eines Systems verstanden. Das besondere an der Entropie ist, dass sie die makroskopischen thermodynamischen Größen mit dem mikroskopischen Verhalten der einzelnen Teilchen in Verbindung bringt.

Im mikrokanonischen Ensemble ist ein Zustand durch die $2f = 2dN$ Positionen und Impulse aller Teilchen bestimmt. Die Entropie eines abgeschlossenen Systems ist durch die Wahrscheinlichkeiten p_i der in diesem möglichen Zustände, genauer *Mikrozustände*, durch

$$S_{\text{mc}} = -k_{\text{B}} \sum_i p_i \ln p_i \quad (6.4)$$

definiert¹. Sofern alle Mikrozustände mit gleicher Wahrscheinlichkeit eintreten, kann die Entropie aus der Summe aller Mikrozustände, der mikrokanonischen Zustandssumme Ω , über

$$S_{\text{mc}} = k_{\text{B}} \ln \Omega \quad (6.5)$$

berechnet werden. Für Mikrozustände r mit Energiewerten E_r ist die mikrokanonische Zustandssumme durch die Summe

$$\Omega_{\text{BM}} = \sum_{(E-\delta E) \leq E_r \leq E} 1 \quad (6.6)$$

aller Zustände im Intervall $(E - \delta E) \leq E_r \leq E$ gegeben, wobei E die Gesamtenergie ist. Diese Entropiebeschreibungen wird „BOLTZMANN-Entropie“ bezeichnet. Hier wird die Zustandssumme aus der Anzahl an Zuständen in einer schmalen Energieschale mit Dicke δE bestimmt. Der GIBBS-Formalismus hingegen bestimmt die Entropie aus der Summe aller Zustände, deren Energie E_r kleiner als die Gesamtenergie E ist. Die mikrokanonische Zustandssumme ist in

¹Da es sich um ein mikrokanonisches Ensemble handelt, ist die Entropie hier mit dem Index „mc“ für *engl.* micro canonical versehen. Für die kanonische Entropie wird entsprechend der Index „c“ verwendet.

diesem Fall durch

$$\Omega_{\text{Gibbs}} = \sum_{E_r \leq E} 1 \quad (6.7)$$

gegeben. Die Zustände können aus dem Phasenraum eines Systems bestimmt werden. Im Fall hochdimensionaler Phasenräume gehen die Zustandssummen nach BOLTZMANN und GIBBS ineinander über.

Im kanonischen Ensemble befindet sich das zu betrachtende System in einem Wärmebad mit Temperatur T . Die Verteilung der Zustände wird durch einen BOLTZMANN-Faktor beschrieben. Dann ist die kanonische Zustandssumme Z eines Systems mit der HAMILTON-Funktion $\mathcal{H}(q_1, \dots, q_N, p_1 \dots p_N)$

$$Z(T) = \int \frac{1}{h^f} e^{-\frac{\mathcal{H}}{k_B T}} dq_1 \dots dq_N dp_1 \dots dp_N. \quad (6.8)$$

Aus der kanonischen Zustandssumme lässt sich die freie Energie $F = -k_B T \ln Z$ bestimmen. Die Entropie des kanonischen Ensembles S_c folgt für ein System ohne Volumen- und Teilchenzahländerung unter Verwendung von $dF = -S_c dT$

$$S_c = k_B \left(\ln Z + \frac{E}{k_B T} \right) + \text{const.} \quad (6.9)$$

und kann somit bis auf eine additive Konstante mithilfe der HAMILTON-Funktion bestimmt werden. Da für zweidimensionale komplexe Plasmen der vollständige Phasenraum vorliegt, die HAMILTON-Funktion jedoch in der Regel nicht vollständig bekannt ist, ist eine mikrokanonische Behandlung vorzuziehen. Solange Gleichgewichtszustände vorliegen, sollte die Äquivalenz der kanonischen und mikrokanonischen Entropie allerdings gegeben sein [294].

In der Gleichgewichtsthermodynamik hat die Entropie zwei fundamentale Eigenschaften: Die Additivität und die Extensivität. Die Additivität der Entropie besagt, dass die Entropie des Gesamtsystems gleich der Summe der Entropien der Teilsysteme ist, $S = S_1 + S_2 + \dots + S_n$. Ist die Entropie eine Funktion einer weiteren Größe X , so ist die Entropie extensiv, falls $S(\alpha X) = \alpha S(X)$ gilt, wobei α eine beliebige reelle Zahl sein kann.

Die Wärmekapazität komplexer Plasmen

Obwohl es Ausnahmen gibt, wird für ein klassisches, ergodisches System (vgl. Kap. 3.4), das zudem dem Gleichverteilungssatz folgt, die Wärmekapazität durch das DULONG-PETIT-Gesetz beschrieben [295]. Generell zeigt die Wärmekapazität in den meisten Kristallen bei Raumtemperatur ein vorhersagbares Verhalten [295]. Die Wärmekapazität kann allerdings von der Temperatur abhängen und insbesondere für $T \rightarrow 0$ K verschwinden. Nach dem Gleichverteilungssatz wird die einem System zugeführte Wärme gleichmäßig auf die Freiheitsgrade verteilt. Die Wärmekapazität ist in diesem Fall

$$C_{\text{DP}} = \frac{f}{2} k_B, \quad (6.10)$$

wobei f die Anzahl an Freiheitsgraden darstellt. Für Systeme mit repulsiver Wechselwirkung wird ein zusätzlicher Faktor Zwei eingeführt, da sowohl kinetische, als auch potentielle Energie zur Wärmekapazität beitragen. Für zweidimensionale komplexe Plasmen ist die Wärmekapazität somit

$$C = 2Nk_B. \quad (6.11)$$

Vergleichbare Systeme, wie zweidimensionale Lagen aus mikrometergroßen paramagnetischen Teilchen [291] oder Simulationen zu YUKAWA-Systemen [292] folgen ebenfalls dem DULONG-PETIT-Gesetz.

6.1.2 Bestimmung des Phasenraumvolumens

Eine statistische Definition der Entropie, die diese aus den Mikrozuständen ableitet, beruht auf den Arbeiten von LUDWIG BOLTZMANN und WILLARD GIBBS. Die Mikrozustände können aus dem durch die Orte und Impulse aller Partikel aufgespannten $2f$ -dimensionalen Phasenraum ermittelt werden. Für ein dreidimensionales System ist der Phasenraum $6N$ -dimensional. Thermodynamische Systeme umfassen Stoffmengen von > 1 mol und beinhalten daher mindestens 6×10^{23} Teilchen. In thermodynamischen Systemen ist die Entropiebestimmung auf diese Weise daher weder sinnvoll, noch numerisch durchführbar, gegeben, man könnte die Orte und Impulse aller Teilchen messen und speichern. In komplexen Plasmen hingegen steht der gesamte Phasenraum zur Verfügung. Teilchenzahlen sind von der Größenordnung $N = 10^3 \dots 10^4$. Zudem spielt die Unschärferelation in diesen klassischen Systemen keine Rolle, so dass Orte und Impulse mit gleichzeitig mit ausreichender Präzision gemessen werden können.

In komplexen Plasmen lässt sich die Entropie unter Ausnutzung der Eigenschaften des BOLTZMANN-GIBBS Formalismus bestimmen. Zur Erklärung der Methode sei ein $2f$ -dimensionaler Phasenraum angenommen. Obwohl hier ein klassisches System betrachtet wird, ist das kleinste durch einen Mikrozustand eingenommene Volumen durch das PLANCKsche Wirkungsquantum h definiert. Das Volumen eines einzelnen Mikrozustandes ist dann h^f . Somit ist die mikrokanonische Zustandssumme Ω mit dem Volumen des Phasenraums V_{Ph} durch

$$\Omega = \frac{V_{Ph}}{h^f} \quad (6.12)$$

verknüpft.

Wie bereits erwähnt, gibt es zwei Arten, die Entropie aus dem Phasenraum zu bestimmen, je nachdem ob man dem Ansatz von BOLTZMANN oder GIBBS folgt. Entweder über die Anzahl an Mikrozuständen im Phasenraumvolumen, das durch eine Oberfläche konstanter Energie eingeschlossen ist (GIBBS) oder über die Anzahl der Mikrozustände auf dieser Oberfläche konstanter Energie (BOLTZMANN). Für einen hinreichend hochdimensionalen Phasenraum sind die so erhaltenen Entropien jedoch nahezu gleich, da der Großteil des Volumens durch die äußere Schale beigetragen wird. Im Feld der statistischen Physik existieren zwei Lager, die jeweils eine der Bestimmungsarten unterstützen und die jeweils andere als falsch deklarieren [296–298].

In dieser Arbeit wird die Entropie aus dem Phasenraumvolumen berechnet, da diese Methode numerisch einige Vorteile mit sich bringt. Die GIBBS-Entropie mit der mikrokanonische Zustandssumme aller Zustände E_r bei einer Gesamtenergie E (vgl. Gl.(6.7)) ist

$$S(E) = k_B \ln \Omega_{E_r \leq E}. \quad (6.13)$$

Die numerische Bestimmung des Phasenraumvolumens erfordert die Berechnung des Volumens eines $2f$ -dimensionalen Körpers. Da die Orte und Impulse in SI-Einheiten stets sehr viel kleiner als Eins sind, kann entweder eine Normierung eingeführt oder die Eigenschaften des Logarithmus in Gl. (6.13) ausgenutzt werden. Es wird an dieser Stelle die fundamentale, jedoch begründete Annahme gemacht, dass der Phasenraum konvex ist. Sofern keine Driftbewegungen oder Instabilitäten auftreten ist diese Annahme gerechtfertigt.

Mit der konvexen Eigenschaft des Phasenraums ist es möglich, dessen Volumen über eine konvexe Hülle zu approximieren. Numerische Standardverfahren wie *Qhull*² sind jedoch nicht für derart hochdimensionale Körper optimiert. Es wird daher an dieser Stelle ein anderer Ansatz verfolgt.

Zur Erläuterung der Methode sei zu Beginn angenommen, dass der Phasenraum durch eine $2f$ -dimensionale Kugel repräsentiert wird, wie es z. B. für ideale Gase der Fall ist [293]. Das Volumen einer d -dimensionalen Kugel mit Radius r berechnet sich nach

$$V = \frac{\pi^{d/2}}{\Gamma(\frac{d}{2} + 1)} r^d, \quad (6.14)$$

wobei hier Γ die Gammafunktion als kontinuierliche Erweiterung der Fakultät darstellt. Nun muss die Kugel nicht in allen Dimensionen die gleiche Ausdehnung besitzen, da die Orte sich um Größenordnungen von den Impulsen unterscheiden. Daher wird der Übergang zu einer d -dimensionalen Ellipse notwendig. Das Volumen ist dann

$$V = \frac{\pi^{d/2}}{\Gamma(\frac{d}{2} + 1)} (r_1 \cdot r_2 \cdot \dots \cdot r_d) = \frac{\pi^{d/2}}{\Gamma(\frac{d}{2} + 1)} \prod_{i=1}^d r_i, \quad (6.15)$$

wobei der Quotient erneut nur Konstanten enthält. Der Phasenraum wird durch die generalisierten Koordinaten und Impulse aufgespannt. Um die Multiplikation von $2f$ $q, p \ll 1$ zu vermeiden, kann nun die Entropieänderung ΔS mithilfe der Gl. (6.13) und Gl. (6.12) umgeschrieben werden. Der Zusatz $E_r < E$ wird an dieser Stelle der Übersichtlichkeit halber

²Der *Qhull* Algorithmus ist ein effizientes Standardverfahren für die Berechnung der konvexen Hülle, einschließlich des von dieser Hülle eingeschlossenen Volumens. Obwohl theoretisch keine Begrenzung für die Dimensionalität d der Körper besteht, skaliert die Berechnungszeit mindestens mit $\mathcal{O}(\nu^{d/2}/\Gamma(d/2))$, wobei ν die Anzahl an Knotenpunkten und Γ die Gammafunktion ist [299].

weggelassen. Einsetzen der generalisierten Koordinaten und Impulse in die Volumina ergibt

$$\begin{aligned}
 \Delta S &= S_B - S_A \\
 &= k_B \ln \Omega_B - k_B \ln \Omega_A \\
 &= k_B \left[\ln \left(\frac{V_B}{h^f} \right) - \ln \left(\frac{V_A}{h^f} \right) \right] \\
 &= k_B \left[\ln \left(\frac{\pi^{f/2}}{\Gamma(\frac{f}{2} + 1)} \frac{\prod_{i=1}^f q_{B,i} p_{B,i}}{h^f} \right) - \ln \left(\frac{\pi^{f/2}}{\Gamma(\frac{f}{2} + 1)} \frac{\prod_{i=1}^f q_{A,i} p_{A,i}}{h^f} \right) \right] \\
 &= k_B \left[\ln \left(\frac{\prod_{i=1}^f q_{B,i} p_{B,i}}{\prod_{i=1}^f q_{A,i} p_{A,i}} \right) \right]. \tag{6.16}
 \end{aligned}$$

Wie im letzten Schritt in Gl. (6.16) zu sehen ist, fallen die geometrischen Faktoren sowie h^f durch die Eigenschaften des Logarithmus heraus. Des Weiteren wurden die generalisierten Koordinaten q und Impulse p eingeführt und multipliziert. Schreibt man Gl. (6.16) nun wieder als Differenz, so kann man die Multiplikation des Logarithmusarguments in eine Summe umwandeln und erhält

$$\Delta S = k_B \left[\ln \left(\prod_{i=1}^f q_{B,i} p_{B,i} \right) - \ln \left(\prod_{i=1}^f q_{A,i} p_{A,i} \right) \right] \tag{6.17}$$

$$= k_B \left[\sum_{i=1}^f \ln (q_{B,i} p_{B,i}) - \sum_{i=1}^f \ln (q_{A,i} p_{A,i}) \right]. \tag{6.18}$$

Die verbleibenden Produkte $q_i p_i$ im Argument des Logarithmus entsprechen dem minimalen einschließenden Rechteck im zweidimensionalen Unterraum des Phasenraums. Bei der Berechnung der Entropieänderung kann der $2f$ -dimensionale Phasenraum als $2f$ -dimensionaler Quader approximiert werden. Absolute Entropiebestimmungen sind allerdings nur mit einem zur Anzahl der Dimensionen proportionalen Fehler möglich. Um die Quaternäherung zu verdeutlichen, werden statt den generalisierten Koordinaten q_i und Impulsen p_i im Folgenden die maximale Ausdehnung des Phasenraums in den jeweiligen Dimensionen mit δq_i bzw. δp_i bezeichnet. Die Entropieänderung beim Übergang von einem Zustand A in einen Zustand B kann somit numerisch aus dem Phasenraum durch

$$\frac{\Delta S}{k_B} = \sum_{n=1}^{2N} [\ln (\delta q_{n,B} \delta p_{n,B}) - \ln (\delta q_{n,A} \delta p_{n,A})]. \tag{6.19}$$

gewonnen werden. Dieses Verfahren wird in den folgenden Abschnitten zur Bestimmung der mit einer Temperaturänderung einhergehenden Entropieänderung in monodispersen und binären komplexen Plasmen verwendet.

6.1.3 Monodisperse Systeme

Im ersten Schritt wird die Wärmekapazität nach Gl. (6.3) in Einkomponentensystemen mithilfe der vorgestellten Methode bestimmt und mit der DULONG-PETIT-Wärmekapazität verglichen. Auf dieser Weise können die fundamentalen Entropieeigenschaften finiter komplexer Plasmen untersucht und eine Grundlage für den Vergleich mit Zweikomponentensystemen geschaffen werden. Da C mit der Partikelzahl N skaliert, wurde das Experiment mit Systemen unterschiedlicher Größe durchgeführt. Um trotzdem ausreichende Datensatzlängen auch aus kurzen Zeitreihen zu erhalten, wurden Systeme im Bereich von $N = 100 \dots 200$ Partikeln untersucht. Zusätzliche Experimente Plasmakristalle mit $N = 30 \dots 100$ sollten zeigen, ob in diesem Regime ein Einfluss der Systemgröße festzustellen ist. Nach der Präparation der Systeme wurde die Laserheizung verwendet, um zwei Zustände unterschiedlicher Temperatur zu erzeugen. Entscheidend ist eine Präparation des geheizten Zustandes unterhalb der Schmelztemperatur des Systems. So wird das Auftreten von Platzwechseln der Partikel vermieden, was zu einer zusätzlichen Änderung der Konfigurationsentropie führt und in Gl. (6.3) berücksichtigt werden müsste. Die Temperaturen wurden jeweils aus den Geschwindigkeitsverteilungen der Zuständen A und B gewonnen. Die Entropieänderungen ΔS werden mithilfe von Gl. (6.19) aus dem Phasenraum bestimmt. Schließlich wird Gl. (6.3) verwendet, um die Wärmekapazitäten zu berechnen. Der Temperaturverlauf $T(t)$ für ein monodisperses System aus $N = 84$ MF-Partikeln mit mittlerem Radius $a_{d, MF} = 4,78 \mu\text{m}$ ist in Abb. 6.2 a) dargestellt. Die Temperaturen $T(t)$ wurden jeweils für alle Partikel aus zehn aufeinanderfolgenden Bildern bestimmt und Verlauf wurde über mehrere Einzelmessungen gemittelt. Die Ausschnitte zeigen zusätzlich die Trajektorien in den beiden farblich markierten Bereichen der Temperaturkurve. In Zustand A beträgt die Temperatur $T_{\text{kin}, A} \approx 15000 \text{ K}$. Die Partikel führen eine starke Bewegung um ihre Ruhelage aus, führen jedoch keine Platzwechsel aus. Dies spricht für eine weiterhin hohe Kopplung des Systems. Bei $t \approx 30 \text{ s}$ wurde die Laserheizung abgeschaltet. Die Partikel dissipieren ihre Energie über die Reibung mit dem Neutralgas und nehmen rasch eine Temperatur von $T_{\text{kin}, B} \approx 600 \text{ K}$ an. Vergleichbare Messungen wurden ebenfalls mit über zehn weiteren monodispersen Systemen mit Partikelzahlen im Bereich von $N = 32$ bis $N = 184$ durchgeführt.

Komplementär wurden Simulationen mit dem in Kap. 3.5 vorgestellten BADCOP-MD-Code durchgeführt. Es wurde eine einzelne Spezies mit $a_1 = 5 \mu\text{m}$ und $\rho_1 = 1510 \text{ kg/m}^3$ verwendet. Die unterschiedlichen Temperaturen wurden mit einem LANGEVIN-Thermostaten erzeugt. Die Ergebnisse für monodisperse Systeme im Experiment sind zusammen mit Simulationsergebnisse in Abb. 6.2 b) dargestellt. Die aus Experiment erhaltenen Wärmekapazitäten stimmen sowohl mit den Simulationsergebnissen als auch mit dem DULONG-PETIT-Gesetz überein. Die Standardabweichungen mehrerer Folgemessungen sind hier als Fehlerbalken eingezeichnet. In der Simulation entsprechen die Fehler näherungsweise der Größe der Marker in der Grafik. Die Messungen folgen exzellent dem linearen Trend der Theorie, berücksichtigt man, dass keine zusätzlichen Annahmen in die Auswertung eingeflossen sind. Die Steigung fällt minimal höher als beim DULONG-PETIT-Gesetz aus. Ein Zunahme des Fehlers mit der Partikelzahl

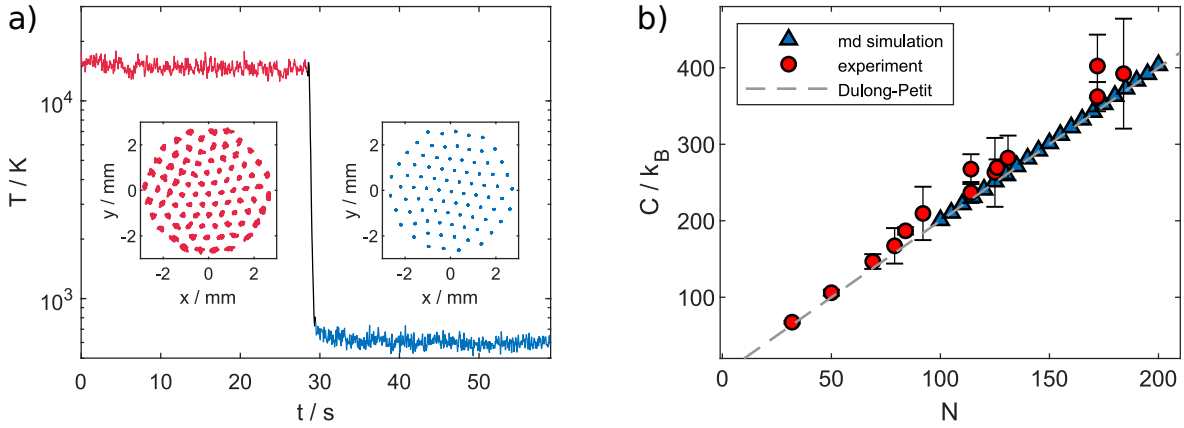


Abbildung 6.2: a) Temperatur T eines monodispersen finiten Plasmakristalls vor und nach Abschalten der Laserheizung. Die ersten 30 s stellen Zustand A dar (rot) und die letzte halbe Minute Zustand B (blau). Zusätzlich sind die Trajektorien aus den jeweiligen Zuständen über einen Zeitraum von 8,3 s eingefügt. b) Erhaltene Wärmekapazitäten C in finiten monodispersen Systemen. Rote Kreise sind die im Experiment erhaltenen Werte und blaue Dreiecke sind Ergebnisse aus LANGEVIN-MD-Simulationen mit BADCOP-MD (vgl. Kap. 3.5). Die auftretende Zunahme des Fehlers mit der Partikelzahl wird in Simulationen nicht beobachtet. Die gestrichelte Linie stellt das DULONG-PETIT Gesetz $C = 2Nk_B$ dar. Aus [289] (© [2019] American Physical Society).

wird im Experiment, jedoch nicht in der Simulation beobachtet. Grund hierfür könnte die höhere Wahrscheinlichkeit für das Vorhandensein von nicht idealen Partikeln in dem System sein, die offensichtlich mit der Partikelzahl zunimmt.

6.1.4 Binäre Mischungen

Wird ein Gesamtsystem aus verschiedenen Teilsystemen zusammengesetzt, die unterschiedliche Entropie aufweisen, so ergeben sich die Eigenschaften des Gesamtsystems aus der Summe der Entropien der Teilsysteme. Die additive Eigenschaft der Entropie folgt aus der Verknüpfung der BOLTZMANN-GIBBS-Entropie mit dem Phasenraumvolumen. Die Additivität der Entropie ist eine fundamentale Eigenschaft klassischer thermodynamischer Systeme. Für ein System bestehend aus zwei Teilsystemen 1 und 2 ist die gesamte Entropieänderung

$$\Delta S = \Delta S_1 + \Delta S_2 \quad (6.20)$$

und falls beide Teilsysteme in beiden Zuständen unterschiedliche Temperaturen aufweisen, gilt für die CLAUSIUSrelation

$$\Delta S = C_1 \ln \left(\frac{T_{B1}}{T_{A1}} \right) + C_2 \ln \left(\frac{T_{B2}}{T_{A2}} \right). \quad (6.21)$$

Im Fall des in Kap. 5 vorgestellten Szenarios einer binären Mischung mit zwei Spezies unterschiedlicher Temperatur tritt eine weitere Besonderheit auf: Im Zustand B weisen die beiden Spezies im Vergleich zum geheizten Zustand eine nahezu gleiche Temperatur auf. Dies ist auf die starke Kopplung der Systeme untereinander zurückzuführen, wobei jede einzelne Spezies sich im Wärmebad des Neutralgashintergrundes befindet. Der maximale Temperaturunterschied (ohne Kopplung) ist ohne zusätzliche, größenabhängige Heizmechanismen

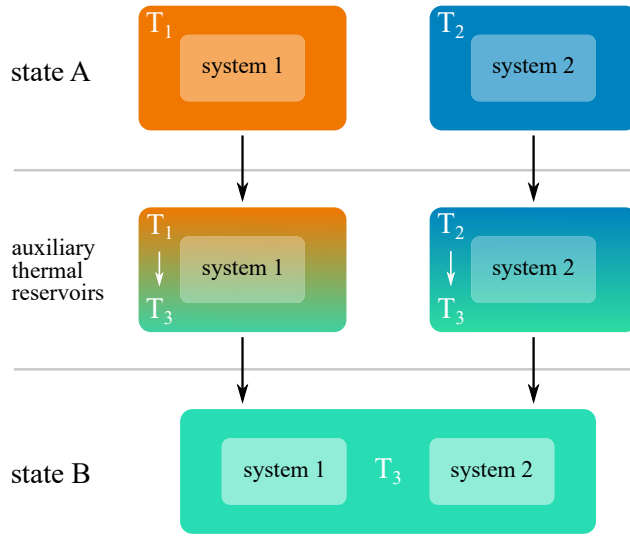


Abbildung 6.3: Schematik des Temperaturequilibrationsprozesses. Zwei Systeme 1, 2 befinden sich zu Beginn im Zustand A im thermischen Gleichgewicht mit verschiedenen Wärmebädern (*engl.* thermal reservoir) mit Temperaturen $T_{1,2}$. Bringt man diese in thermischen Kontakt, so gleichen sich die Temperaturen an, was dem Gleichgewicht mit einem dritten Wärmebad mit Temperatur T_3 gleichkommt (Zustand B). Um den Prozess reversibel zu machen, werden Hilfswärmebäder (*engl.* auxiliary) eingeführt. Aus [289] (© [2019] American Physical Society).

durch das Massenverhältnis der Partikelspezies gegeben [246]. Es liegt also eine Situation vor, die in Zustand A zwei Teilsysteme unterschiedlicher Temperatur und in Zustand B die gleiche Temperatur, nämlich die eines dritten Wärmebades aufweist. Tatsächlich findet sich ein derartiges Beispiel in den Lehrbüchern zur Statistischen Physik und Thermodynamik, da es ein anschauliches, klassisches Gedankenexperiment ist [288, 286, 287]. Das Prinzip ist in Abb. 6.3 illustriert. Gegeben seien zwei thermisch isolierte Körper mit Temperaturen T_1 und T_2 , oder, jeder der Körper an ein Wärmebad mit der entsprechenden Temperatur gekoppelt. Dies stellt den Zustand A dar. In Zustand B werden die Körper in thermischen Kontakt gebracht und es stellt sich eine Gleichgewichtstemperatur T_3 ein. Da der Prozess irreversibel ist und die CLAUSIUSrelation nur für reversible Prozesse gilt, müssen sogenannte Hilfswärmebäder (*engl.* auxiliary thermal reservoir) eingeführt werden. Jedes der Systeme wird einzeln in thermischen Kontakt mit dem Hilfswärmebad gebracht, das zunächst ebenfalls die Temperatur $T_{1,2}$ hat. Ein Prozess gilt es reversibel, wenn er eine Reihe von Gleichgewichtszuständen durchwandert. Daher wird das Hilfswärmebad im nachfolgenden Schritt langsam auf die Temperatur T_3 geregelt, so dass sich stets ein Gleichgewicht mit den Systemen 1 und 2 einstellen kann. Die Entropieänderung des Gesamtsystems lautet in diesem Fall

$$\Delta S = C_1 \ln \left(\frac{T_3}{T_1} \right) + C_2 \ln \left(\frac{T_3}{T_2} \right). \quad (6.22)$$

Wie sich zeigen wird, lässt sich diese Beschreibung ohne Einschränkungen auf die Situation binärer Mischungen im Wärmebad der Laserheizung anwenden.

Im Experiment werden binäre Mischungen aus MF- und SiO_2 -Partikeln nach dem Schema aus Kap. 4.5 präpariert. Die zwei Zustände werden erneut unter Verwendung der Laserheizung erzeugt. Wie in Kap. 5 gezeigt, ist die durch das Laserlicht hervorgerufene Kraft auf die Partikel für die Spezies unterschiedlich. Durch die unterschiedlichen Laserkräfte stellen sich zwei unterschiedliche Temperaturen $T_1 = T_{\text{MF}}$ und $T_2 = T_{\text{SiO}_2}$ ein. Solange die Laserheizung angeschaltet ist, befindet sich das Gesamtsystem in Zustand A. Werden die Laser abgeschaltet, wird die Energie durch Reibung mit Neutralgashintergrund dissipiert. Die Spezies nehmen

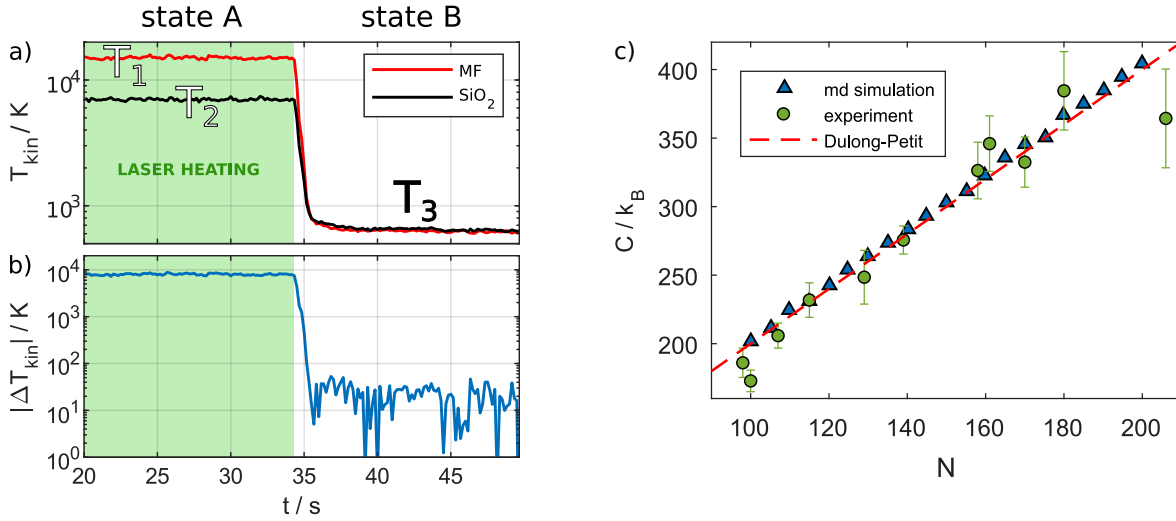


Abbildung 6.4: a) Zeitlicher Verlauf der kinetischen Temperaturen kurz vor und nach Abschalten der Laserheizung. Der grüne Bereich markiert die aktive Laserheizung. Hier liegt Zustand *A* vor. Nach Abschalten der Laser relaxiert das Gesamtsystem in Zustand *B*, in dem die Temperaturen sich annähernd gleichen. b) Absolute Differenz der kinetischen Temperaturen beider Spezies. c) Aus der Entropieänderung ΔS und den Temperaturverhältnissen in binären Mischungen bestimmte Wärmekapazität C in Abhängigkeit der Partikelanzahl N . Aus [289] (© [2019] American Physical Society).

in diesem Zustand annähernd die gleiche Temperatur an. Um den Vergleich mit Zustand *B* aus Abb. 6.3 herstellen zu können, wird geometrische Mittelwert der Temperaturen $T_3 = \sqrt{T_{B,\text{MF}} T_{B,\text{SiO}_2}}$ verwendet. Wie in Kap. 4.4 gezeigt, ist dieser Wert ein gutes Maß für die mittlere Temperatur des Systems. Mit $C = 2Nk_B$ und $N = N_{\text{MF}} + N_{\text{SiO}_2}$ vereinfacht sich die CLAUSIUSrelation aus Gl. (6.3) zu

$$2k_B = \frac{\Delta S}{N_{\text{MF}} \ln\left(\frac{T_3}{T_{\text{MF}}}\right) + N_{\text{SiO}_2} \ln\left(\frac{T_3}{T_{\text{SiO}_2}}\right)}. \quad (6.23)$$

Die zu den monodispersen Systemen vergleichbare Form des Ausdrucks zur Bestimmung der Wärmekapazität ergibt sich, indem beide Seiten von Gl. (6.23) mit N multipliziert werden. Erneut sollen Experimente mit verschiedenen Partikelzahlen zeigen, ob die gemessenen Entropieänderungen mithilfe der CLAUSIUSrelation auch in binäre Mischungen zu sinnvollen Wärmekapazitäten führt. Um ausreichend Partikel beider Spezies für eine sinnvolle Bestimmung der Temperaturen zur Verfügung zu haben, wurden Mischungsverhältnisse im Bereich von 40 – 60 % gewählt.

Abb. 6.4 a) stellt den Vergleich zur Grafik in Abb. 6.3 her. Im geheizten Zustand unterscheiden sich die Temperaturen $T_1 = T_{\text{MF}}$ und $T_2 = T_{\text{SiO}_2}$ der Spezies deutlich. Analog kann dieser Zustand auch durch zwei Teilsysteme, die thermischen Kontakt mit zwei unterschiedlichen Wärmebädern haben, interpretiert werden. Dies stellt Zustand *A* dar. Zum Zeitpunkt $t \approx 34$ s wurde die Laserheizung ausgeschaltet und beide Spezies relaxieren in Zustand *B*, indem die thermische Kopplung an das Wärmebad des Hintergrundgases dominant ist. Beide

Spezies nehmen hier nahezu die gleiche Temperatur an, wie aus dem Verlauf der absoluten Temperaturdifferenz in Abb. 6.4 b) zu erkennen ist. Mit $\Delta T \approx 20$ K liegt diese im Bereich des Messgenauigkeit.

Die aus der Entropieänderung binärer Systeme ermittelten Wärmekapazitäten sind in Abb. 6.4 c) zusammengefasst. Wie bei den monodispersen Systemen wurde eine Darstellung der Wärmekapazität als Funktion der Partikelzahl gewählt. Es wurden elf Systeme unterschiedlicher Gesamtpartikelzahlen im Experiment untersucht. Das DULONG-PETIT-Gesetz ist hier als rot gestrichelte Linie eingezeichnet. Auch hier kann sowohl eine leichte Abweichung der Steigung und eine Zunahme des absoluten Fehlers mit der Partikelzahl beobachtet werden. Die exzellente Übereinstimmung zwischen der aus dem Phasenraum bestimmten Wärmekapazität und dem DULONG-PETIT-Gesetz ohne weitere Annahmen ist auch bei binären Systemen zu beobachten. Die blauen Dreiecke wurden erneut anhand von Simulationsdaten mithilfe des BADCOP-MD-Codes (vgl. Kap. 3.5) gewonnen. Zur Nachahmung des Zweitemperatursystems wurde die Temperatur der kleineren Spezies während der Heizphase mit einem Faktor 0,5 versehen. Nach der Heizphase nehmen beide Spezies exakt die Temperatur des LANGEVIN-Thermostaten an. Die hervorragende Übereinstimmung und geringe Streuung dieser Resultate lässt sich zum einen über die exakt definierten Temperaturen und zum anderen über die Eingabe einer idealen gaußschen Statistik in der Simulation erklären.

6.2 Verteilungsfunktionen komplexer Plasmen

Im Experiment muss sich das System „komplexes Plasma“ bestehend aus Staubpartikeln in der Randschicht eines Niederdruckplasmas nicht zwangsläufig in einem Gleichgewicht mit dem Neutralgas befinden. Zunächst einmal sind die Elektronen und Ionen in den typischen Niederdruckentladungen nicht im Gleichgewicht. Die Elektronentemperatur übersteigt die Ionentemperatur in Hochfrequenzentladungen in Argon näherungsweise um einen Faktor 100 [90]. Elektronen und Ionen strömen auf die Partikel und führen zu deren elektrischer Aufladung. Schnelle Neutralgasatome stoßen mit den Partikeln und verursachen so deren thermische Bewegung. Die Reibung mit dem Neutralgashintergrund sorgt für eine Dämpfung der Bewegung und ermöglicht zunächst einmal das Einstellen eines Gleichgewichtszustandes. Zusätzliche Heizmechanismen wie z. B. durch Ladungsfluktuationen [283, 127, 271] können die sich einstellende Gleichgewichtstemperatur des Systems zusätzlich erhöhen. Letztlich können diverse Instabilitäten auftreten, wie die SCHWEIGERT-Instabilität [300] oder die Mode-Coupling Instability [301], die das System aus diesem Gleichgewichtszustand herausbefördern können. Die Zerstörung des Gleichgewichtszustandes durch Instabilitäten ist ohne weiteres Zutun unwiderbringlich [302, 300, 303], außer bei exotischen Schaltzuständen [304].

Tatsächlich wurden in monodispersen, zweidimensionalen, komplexen Plasmen verschiedene Beobachtungen gemacht, die auf solche Nichtgleichgewichtsprozesse schließen lassen. Eine messbare Folge dieser Prozesse ist z. B. Superdiffusion. Diffusion lässt sich in Systemen, in denen die Trajektorien aller Teilchen zu jedem Zeitpunkt bestimmt werden können, mithilfe der mittleren quadratischen Verschiebung (*engl.* mean square displacement, kurz MSD), analysieren. Auf langen Zeitskalen folgt die MSD einer Potenzfunktion $MSD \propto t^\alpha$. Für $\alpha = 1$

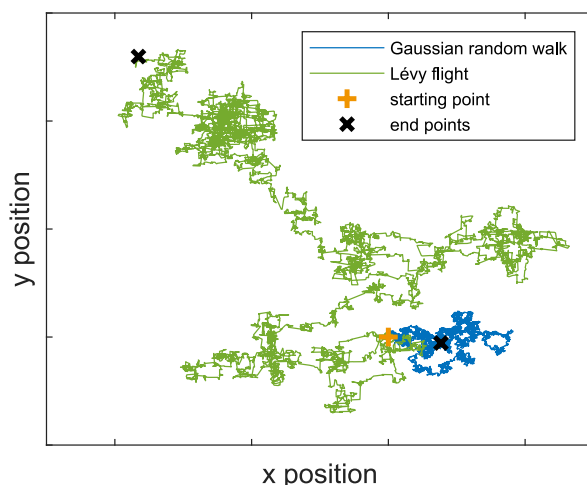


Abbildung 6.5: Random walk mit normalverteilter Schrittweite (blau) und ein Lévy-Flug mit endlastiger Schrittweitenverteilung (grün). Beide random walks starten am selben Punkt (orangefarbenes Plus) und vollführen die selbe Anzahl an Schritten. Durch die Endlastigkeit der Schrittweitenverteilung finden beim Lévy-Flug selten auch weitere Sprünge statt, so dass eine größere Strecke zurückgelegt wird.

liegt normale Diffusion, für $\alpha < 1$ Subdiffusion und für $\alpha > 1$ Superdiffusion vor. Den Spezialfall $\alpha = 2$ bezeichnet man als ballistische Diffusion, die durch eine zusätzliche Drift in dem System verursacht wird [305].

Mikroskopisch kann Superdiffusion unter anderem durch sogenannte Lévy-Flüge entstehen. Ein Lévy-Flug ist ein *random walk*, bei dem die Sprungweite nicht mehr normalverteilt ist, sondern einer endlastigen Verteilung³ folgt. Dadurch treten vermehrt weit größere Sprünge auf, als bei einem normalen random walk. Ein anschauliches Beispiel hierfür ist die Position von Flugreisenden. Am Heimatort wird der Flugreisende nur kurze Strecken (Weg zur Arbeit, Erledigungen, etc.) absolvieren. Durch die Flugreise erfolgt ein größerer Sprung in eine andere Stadt, wo sich der Reisende erneut nur lokal fortbewegen wird. In Abb. 6.5 sind ein random walk mit normalverteilter Schrittweite und ein random walk mit endlastiger Schrittweite, ein Lévy-Flug, gezeigt. Beide Trajektorien starten am selben Punkt und vollführen die selbe Anzahl an Schritten, jedoch legt Lévy-Flug eine deutlich größere Strecke zurück, was durch die erhöhte Anzahl an großen Sprüngen zu erklären ist.

Das Verlassen des Gleichgewichtszustandes hat fundamentale Konsequenzen für die Verteilungsfunktionen des Systems. So gilt für superdiffusive Systeme z. B. der zentrale Grenzwertsatz nicht mehr [306]. Experimentelle und numerische Arbeiten zur Diffusion in zweidimensionalen komplexen Plasmen und YUKAWA-Systemen zeichnen zunächst ein kompliziertes Bild. So zeigen Experimente, in denen der Phasenübergang durch Instabilitäten hervorgerufen wird (z. B. durch ein oder mehrere Partikel in einer zusätzlichen Lage unterhalb des Kristalls) teilweise deutliche Anzeichen von Superdiffusion [49, 307], jedoch in anderen Fällen auch lediglich normale Diffusion [50]. Wird der Phasenübergang durch eine Laserheizung hervorgerufen, so scheint das Maß an anomaler Diffusion vom Heizverfahren selbst abzuhängen [51, 308]. Erste Simulationen zu idealen ungedämpften YUKAWA-Systemen zeigen ebenfalls Superdiffusion [309]. Dadurch motivierte, umfangreiche Simulationen, die sowohl die Kopplung als auch die Reibung variieren, zeigen, dass Superdiffusion in einem Gleichgewichtszustand bereits bei geringer Reibung unterdrückt wird [52]. Danach wäre die Superdiffusion unter realen

³Eine Verteilung ist endlastig, wenn ihre Ränder langsamer als exponentiell, z. B. bei einer GAUSS-Verteilung, abfallen. In der englischsprachigen Literatur findet man die Bezeichnungen „heavy-tailed“, „fat-tailed“ oder „long-tailed“ für derartige Verteilungen.

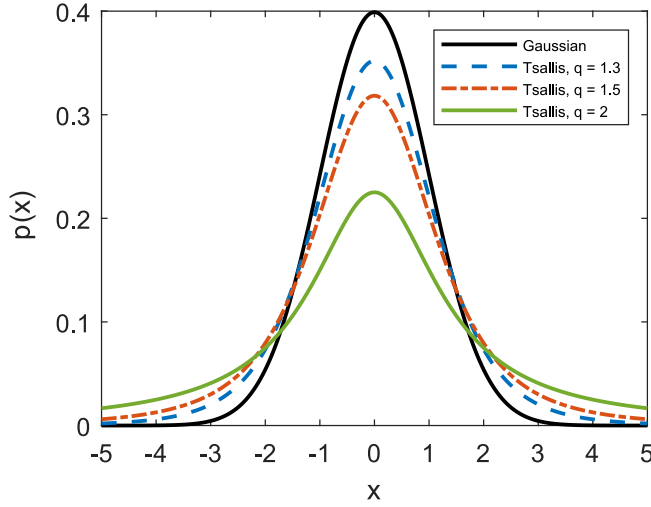


Abbildung 6.6: Vergleich einer Standardnormalverteilung mit endlastigen TSALLIS-Verteilungen verschiedener q -Werte. Mit steigenden q erhöht sich die überproportionale Gewichtung der Ränder. Für $q = 2$ liegt eine CAUCHY-Verteilung oder LORENTZ-Funktion vor.

Bedingungen nur zu erwarten, falls der Gleichgewichtszustand gestört ist und stellt damit ein klares Anzeichen für einen Nichtgleichgewichtszustand dar. Hingegen kann eine Endlastigkeit der Geschwindigkeitsverteilungen auch auf eine zu geringe Menge an Ereignissen schließen lassen, da die tatsächliche Verteilung nur unzureichend abgebildet wird [310]. Messungen der MSD können als komplementäre Methode Klarheit liefern, erfordern jedoch eine sehr hohe Orts- und Zeitaufösung der verwendeten Diagnostik.

Es stellt sich zum einen die Frage, wie stark Nichtgleichgewichtsphänomene ins Gewicht fallen und zum anderen, inwiefern eine sorgfältige Präparation möglich ist oder Parameterregime existieren, in denen diese Prozesse unterdrückt werden und die One-Component Plasma (OCP) Beschreibung verwendet werden kann. Theoretisch können sich in komplexen Plasmen wohldefinierte thermodynamische Gleichgewichtszustände einstellen [282]. Einzelne Experimente zeigen bereits, dass trotz der oben genannten Prozesse fundamentale Gesetzmäßigkeiten wie z. B. die Fluktuationstheoreme in stark gekoppelten komplexen Plasmen gelten [66].

Nicht-gaußsche symmetrische Verteilungen

Um endlastige symmetrische Verteilungsfunktionen zu charakterisieren, kann das q -Analogon der GAUSS-Verteilung, die sogenannte q -GAUSS-Verteilung (*engl.* q -gaussian) verwendet werden. Die q -GAUSS-Verteilung gehört zur Familie der TSALLIS-Verteilungen⁴. q -Analoge sind Verallgemeinerungen von Funktionen, die für $q \rightarrow 1$ in den Normalfall übergehen. Mit der „ q -Verallgemeinerung der Exponentialfunktion“ $e_q(x) = [1 + (1 - q)x]^{\frac{1}{1-q}}$ erhält man für die Wahrscheinlichkeitsdichte der q -GAUSS- (TSALLIS-)Verteilung

$$p_r(x) = \frac{1}{\sqrt{2\sigma^2} C_q} \left[1 - (1 - q) \frac{x^2}{2\sigma^2} \right]^{\frac{1}{1-q}} \quad (6.24)$$

⁴Oft wird die Bezeichnung TSALLIS-Verteilung für endlastige Normalverteilungen verwendet. Obwohl dieser Begriff korrekt ist, ist er unpräzise, da es sich bei TSALLIS-Verteilungen um eine Familie an Verteilungsfunktionen handelt. Aufgrund der Popularität des Begriffs wird er jedoch auch in dieser Arbeit verwendet.

mit der Normierungsfunktion [306]

$$C_q = \begin{cases} \sqrt{\pi}, & \text{wenn } q = 1 \end{cases} \quad (6.25)$$

$$C_q = \begin{cases} \frac{\sqrt{\pi} \Gamma\left(\frac{3-q}{2(q-1)}\right)}{\sqrt{q-1} \Gamma\left(\frac{1}{q-1}\right)}, & \text{wenn } 1 < q < 3, \end{cases} \quad (6.26)$$

wobei Γ die Gammafunktion, also die kontinuierliche Äquivalenz der Fakultät, ist. Für $q \rightarrow 1$ geht die TSALLIS-Verteilung in eine GAUSS-Verteilung über und im Spezialfall $q = 2$ entspricht sie einer LORENTZ-Funktion bzw. einer CAUCHY-Verteilung. In Abb. 6.6 sind einige Fälle einer TSALLIS-Verteilung mit der herkömmlichen Standardnormalverteilung mit Standardabweichung $\sigma = 1$ verglichen. Es zeigt sich mit ansteigendem q eine zunehmende Endlastigkeit der Ränder der Verteilung.

Nicht alle Systeme befinden sich zwangsläufig in dem Idealzustand eines Gleichgewichts. Beispiele für physikalische Systeme die einer TSALLIS-Statistik folgen sind z. B. Systeme mit langreichweitiger Wechselwirkung [311], Granulare Medien [312], LÉVY-artige anomale Diffusion [51] und auch das Magnetfeld der Heliosphäre [313]. Ein Übergewicht der Ränder lässt sich auch im Aktienhandel [314] oder in den Herzschlagintervallen von Herzinfarktpatienten finden [315]. In komplexen Plasmen wurde ebenfalls vom Auftreten derartiger Merkmale in den Geschwindigkeitsverteilungen berichtet [308].

6.2.1 Ein Maß für die Gewichtung der Ränder einer Stichprobe

Liegen zu kleine Datensatzlängen vor, so können die Verteilungsfunktionen trotz gaußscher Statistik von einer Normalverteilung abweichen. Aufgrund der geringen Datensatzlänge erfahren Ausreißer am Rand der Verteilung eine zu hohe Gewichtung und verzerren die Auswertung [310]. Eine Methode, um die Übergewichtung des Randes zu quantifizieren, basiert auf dem sogenannten „Medcouple“ [316]. Der Median einer Probe X , $\text{med}(X) = \tilde{x}$, ist zunächst ein robustes Maß für den Mittelwert einer Probe in Anwesenheit von Ausreißern. Für eine sortierte Probe $\{x_1 < \dots < x_N\}$ ist der Median \tilde{x} durch

$$\text{med}(X) = \tilde{x} = \begin{cases} x_{(n+1)/2}, & \text{wenn } n \text{ ungerade} \end{cases} \quad (6.27)$$

$$\begin{cases} (x_{n/2} + x_{(n/2)+1})/2, & \text{wenn } n \text{ gerade} \end{cases} \quad (6.28)$$

gegeben. Für eine ebensolche sortierte Probe lässt sich ebenfalls ein Kern der Form

$$h(x_i, x_j) = \frac{(x_j - \tilde{x}) - (\tilde{x} - x_i)}{(x_j - x_i)} \quad (6.29)$$

definieren. Das Medcouple MC ist nun der Median des Kerns $h(x_i, x_j)$ für ein Paar x_i, x_j , das die Bedingung $x_i \leq \tilde{x} \leq x_j$ erfüllt, also

$$MC = \text{med}_{x_i \leq \tilde{x} \leq x_j} h(x_i, x_j) \quad (6.30)$$

	$q < 5/3$	$5/3 < q < 3$
a_m	0,20177750	0,17071450
b_m	0,28213917	0,38767097
c_m	0,08314083	-0,00837164

Tabelle 6.1: Anpassungskoeffizienten für die robuste Bestimmung des q -Parameters mithilfe des Medcouple. Aus [317].

und z. B. invariant unter Skalierungsoperationen. Das Medcouple lässt sich auf beide Ränder einer Verteilung anwenden und erlaubt daher die separate Quantifizierung einer möglichen Übergewichtung der Ränder [317]. Das linke und rechte Medcouple einer Verteilung wird durch

$$LMC = -MC(\{x_1 < \dots < \tilde{x}\}) \quad (6.31)$$

$$RMC = MC(\{\tilde{x} < \dots < x_N\}) \quad (6.32)$$

bestimmt. Von einer vorliegenden Probe X kann nun das ausreißerbereinigte q_{robust} über den folgenden Satz an Gleichungen berechnet werden. Zunächst wird das Medcouple einer der Ränder, hier beispielsweise des rechten Randes, bestimmt. Mit $m(q) = RMC(X(q))$ und den Koeffizienten aus Tabelle 6.1 kann dann das folgende Gleichungssystem

$$m(Z) = \tanh(a_m + b_m Z + c_m Z^2) \quad (6.33)$$

$$q_{\text{robust}}(m) = 3 - \frac{2}{1 + Z(m)} \quad (6.34)$$

bezüglich q_{robust} gelöst werden und somit ein ausreißerbereinigtes q für die gegebene Probe bestimmt werden [317]. Diese Methode wird im folgenden Abschnitt angewandt, um die Geschwindigkeitsverteilungen der Messungen zur Bestimmung der CLAUSIUSrelation beurteilen zu können.

6.2.2 Endlastigkeit der Geschwindigkeitsverteilungen

Bei der Temperaturbestimmung aus den Geschwindigkeitsverteilungen kann ein systematischer Fehler durch die Fehlannahme des zugrunde liegenden Modells auftreten. Um die Temperaturen zu bestimmen werden in der Regel MAXWELL-BOLTZMANN-Geschwindigkeitsverteilungen an die Histogramme der gemessenen Geschwindigkeiten angepasst. Eine Abweichung von einer gaußschen Statistik wirkt sich in komplexen Plasmen unter anderem auf die Ränder der Geschwindigkeitsverteilungen aus. Obwohl sich bei einer TSALLIS-Statistik mit $q > 1$ eine Endlastigkeit der Ränder der Verteilung zeigt, und man dies mit dem Parameter q quantifizieren kann, ist der Grund für die Endlastigkeit nur eingeschränkt bestimmbar. In jedem Fall beeinflusst eine derartige Abweichung die Temperaturmessung.

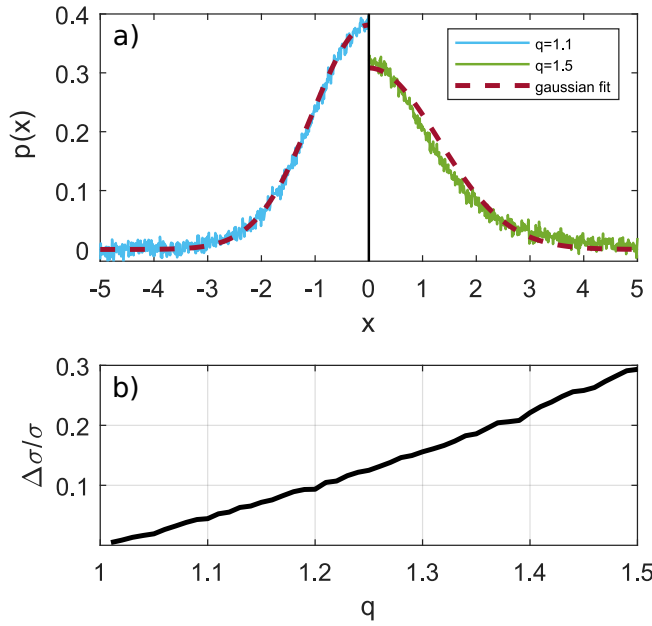


Abbildung 6.7: Auswirkung einer nicht-gaußschen Statistik auf die ermittelten Wahrscheinlichkeitsmaße, in diesem Fall die Standardabweichung. a) Fehlanpassung einer GAUSS-Verteilung an verrauschte TSALLIS-Verteilungen mit $q = 1,1$ (blau) und $q = 1,5$ (grün). Die roten gestrichelten Linie sind angepasste Normalverteilungen. b) Relative Abweichung zur Standardabweichung der äquivalenten Normalverteilung.

Die Auswirkung einer nicht-gaußschen Statistik auf die Varianz wurde an TSALLIS-Verteilungen mit unterschiedlichen q untersucht. Dazu wurde die Standardabweichung über eine Anpassung mit einer Normalverteilung an die Daten bestimmt und mit der ursprünglichen Standardabweichung verglichen. Um einen Einfluss der Datensatzlänge auszuschließen wurde, statt Zufallszahlen zu erzeugen, die Wahrscheinlichkeitsdichte aus Gl. (6.24) mit einem weißen Rauschen überlagert. Der Fehler wurde über die quadratische Abweichung zwischen der tatsächlichen und der ermittelten Standardabweichung $\Delta\sigma = \sqrt{(\sigma_{\text{fit}} - \sigma_{\text{real}})^2}$ berechnet. Die Ergebnisse sind in Abb. 6.7 zusammengefasst. In 6.7 a) sind zwei TSALLIS-Verteilungen mit $q = 1,1$ (blau) und $q = 1,5$ (grün) gezeigt. Die roten gestrichelten Linien sind angepasste GAUSS-Verteilungen. Für kleine q tritt die Abweichung ausschließlich in den Rändern der Verteilung auf und wirkt sich daher nur marginal auf die Standardabweichung aus. Die Fehlanpassung der Standardabweichungen $\Delta\sigma$ ist normiert mit der Standardabweichung in 6.7 b) gezeigt. Für $q = 1,1$ beträgt die Fehlanpassung näherungsweise 5% und für $q = 1,2$ ist $\Delta\sigma/\sigma = \pm 10\%$. Vergleicht man mit den Fehlern der Temperaturmessung aus dem vorherigen Kapitel, so sind die Unsicherheiten für kleine $q < 1,2$ von vergleichbarer Größenordnung wie die Fehler durch die Massenunsicherheiten. Für $q > 1,3$ sind allerdings Beeinträchtigungen der Temperaturmessung zu erwarten.

Die Geschwindigkeitsverteilungen aus Abschnitt 6.1.3 und 6.1.4 zeigen tatsächlich eine minimale Übergewichtung der Ränder. Eine Anpassung mit einer TSALLIS-Verteilung hat sich allerdings als zu insensitiv für diese Daten herausgestellt. Daher soll hier die in Abschnitt 6.2.1 vorgestellte Methode verwendet werden, um die Verteilungen der diesem Kapitel zugrunde liegenden Messungen beurteilen zu können. Da die Laserheizung justiert ist um MAXWELL-BOLTZMANN-Verteilung zu erzeugen, liefert nur eine Untersuchung des ungeheizten Zustandes eine Aussage über komplexe Plasmen in einem Neutralgashintergrund. Abb. 6.8 zeigt den Parameter q_{robust} für alle monodispersen (a) und binären Systeme (b), aufgetragen anhand der Gesamtpartikelzahl. Die gestrichelten Linien markieren jeweils die Mittelwerte. Obwohl

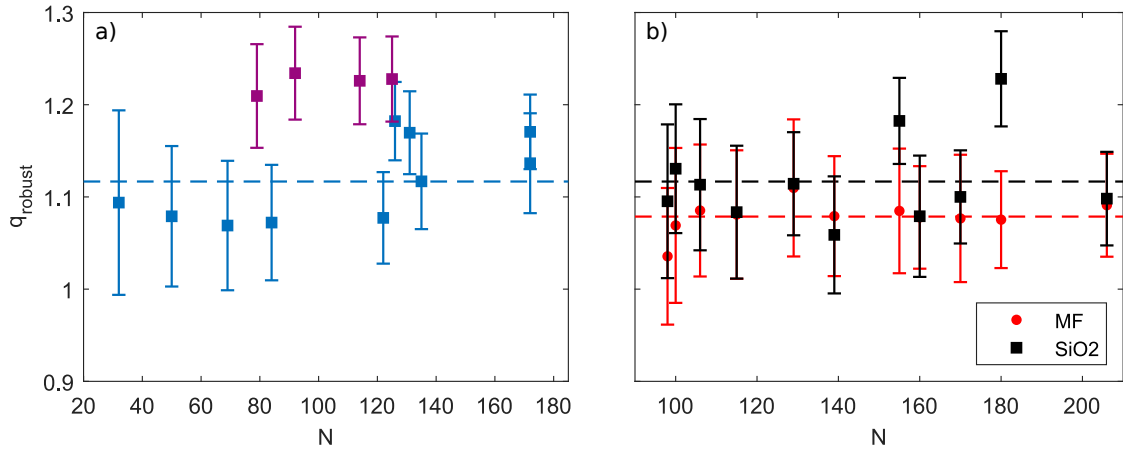


Abbildung 6.8: Ergebnisse der Bestimmung eines robusten Wertes für die Nichtextensivität q nach der Methode von DE SANTA HELENA *et al.* [317]. Die Größe q_{robust} wurde für die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen an monodispersen (a) und binären Systemen (b) berechnet. Die gestrichelten Linien geben die Mittelwerte an. Die lila eingefärbten Ausreißer in a) stammen aus Experimenten eines einzelnen Tages und könnten auf eine Verunreinigung in der Plasmakammer zurückzuführen sein. Diese Werte wurden nicht für den Mittelwert berücksichtigt. Die Verteilungen beider Spezies in binären Mischungen zeigen in b) nahezu gleiche q -Werte.

es einige Ausreißer nach oben gibt, scheint ein Häufungspunkt bei $q_{\text{robust}} \approx 1,11 \pm 0,1$ vorzuliegen. Ein Vergleich mit Abb. 6.7 b) lässt einen Fehler von $\Delta\sigma_v/\sigma_v = \pm 5\%$ für die Standardabweichungen erwarten. Die lila eingefärbten Messungen in Abb. 6.8 a) weichen mit einem Mittelwert von $q_{\text{robust}} \approx 1,22$ stärker von einer gaußschen Statistik ab, gehen jedoch auch mit einem größeren Fehler in den erhaltenen Wärmekapazitäten einher (s. Abb. 6.2 b)). Da die abweichenden Messungen gemeinsam an einem anderen Tag durchgeführt worden sind, könnte ein überlagernder Effekt des Experiments selber für die Abweichung verantwortlich sein. Die in den Messungen auftretenden Abweichungen von einer gaußschen Statistik sind marginal und bei der Temperaturbestimmung den Unsicherheiten der Partikelmassen untergeordnet.

6.3 Fazit

Die erzielten Resultate in monodispersen sowie binären Mischungen mögen banal erscheinen, jedoch haben sie fundamentale Konsequenzen für die Beurteilung der Thermodynamik (finiter) komplexer Plasmen. Die mit einer Wärmeänderung einhergehende Entropieänderung wurde in zweidimensionalen komplexen Plasmen aus dem Phasenraum bestimmt. Mithilfe der CLAUSIUS-Relation konnten die erhaltenen Werte in Wärmekapazitäten umgewandelt und somit in eine aussagekräftige Form gebracht werden. Ein Vergleich mit der DULONG-PETIT-Wärmekapazität zeigt eine exzellente Übereinstimmung. Die verwendete Methode der Entropiebestimmung ist offenbar gut für die vorliegenden Systeme geeignet.

Wie in Abschnitt 6.1.1 aufgeführt, ist das DULONG-PETIT-Gesetz eine gute Beschreibung für die Wärmekapazität in klassischen, ergodischen Systemen. Die Experimente und Simulationen zur Bestimmung der Partikelladungen mithilfe der Konfigurationstemperatur in Kap. 3.6 zeigen zudem, dass die Temperaturbestimmung aus den Geschwindigkeitsverteilungen robust, eindeutig und mit ausreichender Präzision möglich ist. Daraus lässt sich folgern, dass die

Bestimmung der Entropieänderung aus dem Phasenraum für finite Systeme mit ausreichender Präzision möglich ist, um thermodynamische oder kalorische Größen wie die Wärmekapazität zu bestimmen. Die folgenden Erkenntnisse lassen sich aus den Untersuchungen dieses Kapitels ableiten.

Die aus den Phasenraumvolumina bestimmte Entropieänderung liefert mithilfe der CLAUSIUSrelation eine sehr gute Übereinstimmung zwischen gemessener und theoretisch zu erwartender Wärmekapazität. Die GIBBS-Entropie erlaubt somit eine robuste Bestimmung von ΔS . Aufgrund der hohen Dimensionalität des Phasenraumes der untersuchten Systeme lassen sich BOLTZMANN- und GIBBS-Entropie äquivalent nutzen. Die experimentelle Bestimmung der Phasenraumvolumina erlaubt gegenüber der Oberflächenbetrachtung nach BOLTZMANN eine robustere Bestimmung der Entropie und zeigt eine sehr gute Übereinstimmung zwischen gemessener und aus der CLAUSIUSrelation erwarteter Wärmekapazität. Somit ist die experimentelle Bestimmung der GIBBS-Entropie für Vielteilchensysteme gut geeignet.

Die Durchführung der Experimente mit binären finiten Systemen erlaubt die Überprüfung einer der fundamentalen Eigenschaften der Entropie: Die Additivität. Demnach entspricht die gesamte Entropieänderung eines Systems der Summe der Entropieänderungen der Teilsysteme. Für komplexe Plasmen konnte erstmals gezeigt werden, dass in einer binären Mischung aus MF- und SiO_2 -Partikeln $\Delta S = \Delta S_{\text{MF}} + \Delta S_{\text{SiO}_2}$ gilt. Es ist keine Einschränkung dieser Aussage für zukünftige Messungen in polydispersen Systemen zu erwarten.

Die Staubpartikel befinden sich in einem Wärmebad, das aus dem Neutralgashintergrund und zusätzlichen Heizmechanismen besteht. Damit ist das System aus Staubpartikeln streng genommen ein kanonisches Ensemble und eine Behandlung des Systems müsste mit dem entsprechenden Formalismus erfolgen. Die kanonische Zustandssumme setzt jedoch die vollständige Kenntnis der HAMILTON-Funktion voraus (s. Gl. (6.8)). Für kurzreichweite Systeme gehen die Ensemblebeschreibungen jedoch ineinander über. Demnach sollte die mikrokanonische Behandlung zu der gleichen Entropieänderung kommen, wie der kanonische Formalismus. Die gute Übereinstimmung der Wärmekapazität mit der Theorie, die durch die Verwendung der GIBBS-Entropie erzielt wurde, legt das Vorliegen der Äquivalenz der Ensemblebeschreibungen für diese finiten YUKAWA-Systeme mit abgeschirmter Wechselwirkung nahe.

Die Zugabe einer zweiten Spezies ändert die grundlegende Verteilungsfunktion des Systems nicht, wie ein Vergleich der beiden Grafiken in Abb. 6.8 zeigt. Trotz einiger Ausreißer zeigt sich prinzipiell in beiden Kompositionen ein vergleichbares Bild.

Klassische thermodynamische Systeme sind neben der Forderung nach Gleichgewichtszuständen durch hohe Teilchenzahlen und Abmessungen, die größer als die charakteristische Länge in diesen System sind, definiert. Finite Systeme bestehen zum einen nur aus wenigen Partikeln und weisen zudem Randeffekte auf. Generell sollte der mikrokanonische Formalismus auf Systeme ab etwa hundert Teilchen anwendbar sein [318]. In finiten komplexen Plasmen konnte die Wärmekapazität unter Verwendung der CLAUSIUSrelation und der aus dem Phasenraum bestimmten Entropieänderung für Kristalle aus $N = 30$ Partikeln bestimmt werden.

Ausblick: Parametrisierte Erzeugung beliebiger Verteilungsfunktionen

Mit der Laserheizung kann die kinetische Temperatur eines Ensembles erhöht werden. Gleichzeitig ist die Methode optimiert, um MAXWELL-BOLTZMANN-Verteilungen in dem Partikelsen-semble zu erzeugen. In dieser Konfiguration zwingt der Heizmechanismus dem System die gaußsche Statistik auf. Auf die gleiche Weise sollte es demnach auch möglich sein, dem System eine andere, nicht-gaußsche Statistik aufzuzwingen, beispielsweise eine TSALLIS-Statistik. In optischen Gittern [319] und Granularen Medien [312] konnte die parametrisierte Erzeugung von TSALLIS-Verteilungen bereits umgesetzt werden. Dies ist jedoch nur sinnvoll, wenn reproduzierbare Verteilungsfunktionen erzeugt werden können. Dazu muss der fundamentale Parameter q eindeutig parametrisierbar sein. Tatsächlich kann gezeigt werden, dass für eine Exponentialverteilung einer derartige Parametrisierung möglich ist [320]. Dieser Sachverhalt lässt sich auf symmetrische Verteilungen erweitern. Eine numerische Exploration an Normalverteilungen zeigt vielversprechende Ergebnisse. In einem System, dessen Geschwindigkeiten einer MAXWELL-BOLTZMANN-Verteilung folgen, ist die Varianz der Geschwindigkeiten mit der Temperatur über $\sigma_v^2 = k_B T / m_d$ verknüpft. Für die Laserheizung wird den oben aufgeführten Überlegungen zufolge eine Variation der Temperatur benötigt, um die Geschwindigkeitsverteilungen derart zu modifizieren. Eine Umsetzung im Experiment könnte zum einen über eine Variation der Laserintensität oder mittleren eingebrachten Energie erfolgen. Hierbei handelt sich allerdings nur um die Superposition zeitlich unkorrelierter Gleichgewichtszustände bei unterschiedlichen Temperaturen. Auch wenn auf diese Weise die Geschwindigkeitsverteilung über lange Zeitreihen beeinflusst werden kann, so ist die Dynamik des Systems nicht grundlegend verschieden von einem einzelnen Gleichgewichtszustand konstanter Temperatur.

Ein alternativer Ansatz kann direkt über der Bewegung der Laserstrahlen realisiert werden. Führt man stochastisch Zeitpunkte ein, an denen der Laserstrahl kurz nicht weiter bewegt wird, so wird der Impulsübertrag auf Partikel im Strahl zu diesem Zeitpunkt erhöht. Ein im Strahl befindliches Partikel wird einen LÉVY-Flug absolvieren. Bei genügend vielen dieser Ereignisse werden die Ränder der Geschwindigkeitsverteilung entsprechend stärker gewichtet. Erste Experimente zeigen, dass die Übergewichtung der Ränder mit der Wahrscheinlichkeit p_{stop} skaliert, die mit der Anzahl an Stopps in einem gegebenen Zeitintervall verknüpft ist. In Abb. 6.9 sind resultierende Histogramme für verschiedene p_{stop} gezeigt. Die Dauer eines Stopps betrug 20 ms. Offensichtlich erzeugt dieser erste naive Ansatz noch keine idealen TSALLIS-Verteilungen, erlaubt jedoch eine Modifizierung der Geschwindigkeitsverteilungen. Die Wahl einer geeigneten Signalform während eines Stopps sollte in der Zukunft die Realisierung beliebiger Verteilungsfunktionen mit der Laserheizung ermöglichen.

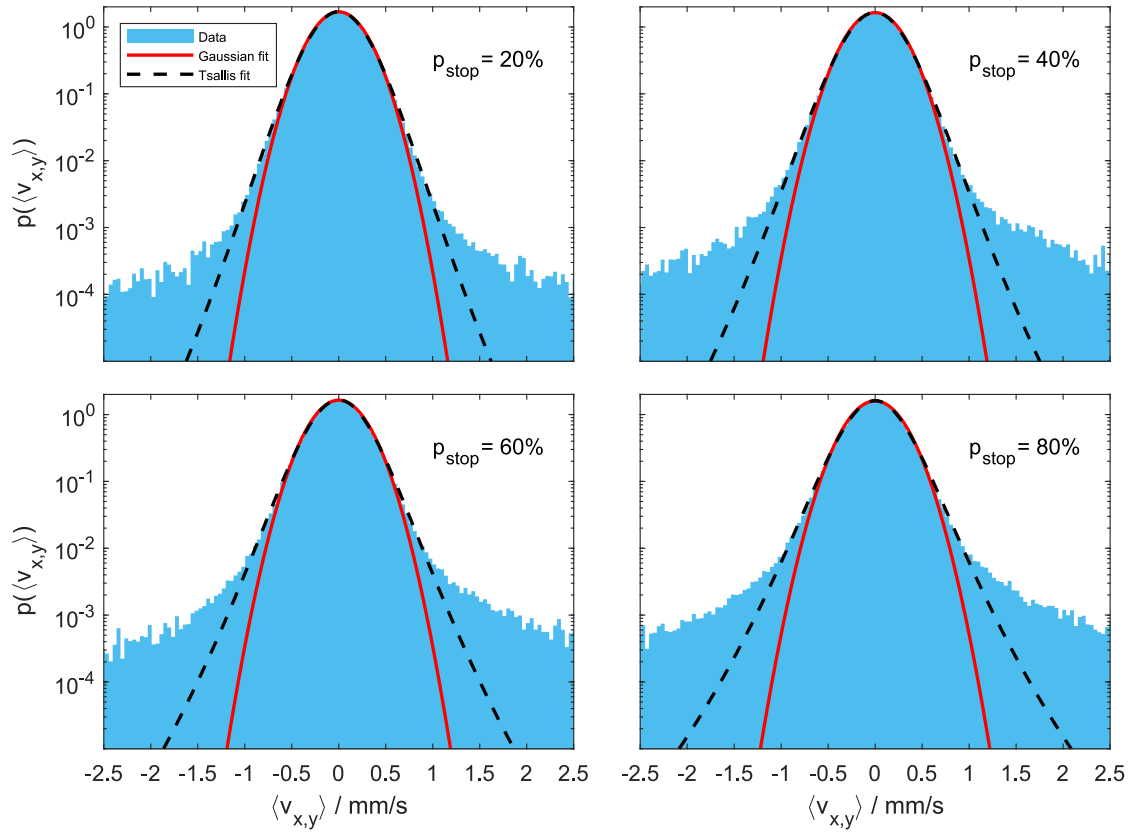


Abbildung 6.9: Vorläufige Ergebnisse zur Erzeugung nicht-maxwellscher Geschwindigkeitsverteilungen. Das Bewegungsschema der Laserheizung wurde um statistisch verteilte Anhaltvorgänge des Laserstrahls erweitert. Diese Stopps treten mit einer einstellbaren Wahrscheinlichkeit p_{stop} auf. Die Geschwindigkeitsverteilungen weisen mit zunehmendem p_{stop} eine stärkere Population in den Rändern auf.

7 | Zusammenfassung

In der vorliegenden Dissertation wurden die strukturellen und (thermo-)dynamischen Eigenschaften binärer komplexer Plasmen untersucht. In der Forschung wurden in der Vergangenheit hauptsächlich monodisperse Partikelensembles mit festem mittleren Partikelradius und schmaler Größenverteilung verwendet, während in der Natur staubige Plasmen polydispers auftreten [321, 322]. Binäre Mischungen, bestehend aus zwei Partikelsorten mit signifikantem Größenunterschied, stellen einen wichtigen ersten Schritt auf dem Weg zu polydispersen komplexen Plasmen im Labor dar [12]. Da die auf die Partikel wirkenden Kräfte mit dem Partikelradius skalieren (vgl. Kap. 2.4), ist bei Zugabe einer zweiten Spezies eine Modifikation der gesamten Kräftebilanz zu erwarten. Insbesondere war der Erhalt der Analogie komplexer Plasmen zu One-Component Plasmas bei der Zugabe einer zweiten Spezies zu überprüfen.

Das Ziel dieser Arbeit war die Charakterisierung des Übergangs von monodispersen zu binären Systemen in komplexen Plasmen. Zusätzlich im Fokus standen der Übergang von quasi-zweidimensionalen zu zweidimensionalen Systemen, die Manipulation mit Laserlicht und die Thermodynamik. Gegenstand der Experimente waren finite binäre Systeme aus $N \lesssim 200$ Partikeln mit einem Mischungsverhältnis von 50 %. Die negativ geladenen Partikel levitieren in der Plasmarandschicht auf einer Gleichgewichtshöhe, die sich aus der Bilanz von Gewichtskraft und elektrischer Feldkraft ergibt.

Struktur

Ein erster Fokus lag auf der Untersuchung der Auswirkung einer veränderten Kräftebilanz auf den Einschluss der Partikel und die horizontale Struktur der Plasmakristalle (vgl. Kap. 4). Im Experiment sind die Partikel- und Plasmaeigenschaften nicht beliebig einstellbar oder unabhängig voneinander mit hoher Präzision messbar. Aus diesem Grund wurden Molekulardynamik-Simulationen für eine Parameterstudie der wichtigsten Einflussfaktoren verwendet. Der eigens entwickelte BADCOP-MD-Code hat sich als zuverlässiges komplementäres Computerexperiment bewährt, das die Situation in der Plasmarandschicht ausreichend abbildet.

Im Plasma durchläuft die Struktur (quasi-)zweidimensionaler binärer Systeme drei Stadien. Sowohl die Levitationshöhe, als auch die radiale Verteilung der Spezies hängt von der spezifischen Ladung $\zeta = Q_d/m_d$ der Spezies ab. Da der Partikelradius für eine Spezies mit der Expositionszeit im Plasma abnimmt [207] und damit ζ zunimmt, variieren ebenfalls die vertikale und horizontale Kräftebilanz (vgl. Kap. 4.3). Es stellen sich drei Stadien ein:

Im ersten Stadium levitiert Spezies 1 unterhalb von Spezies 2. Das System ist entmischt mit Spezies 1 innen und Spezies 2 außen. Im zweiten Stadium levitieren die Spezies auf nahezu der selben Höhe. Das System ist durchmischt und beide Spezies sind homogen verteilt. Im dritten Stadium levitiert Spezies 1 oberhalb von Spezies 2. Das System ist erneut entmischt mit Spezies 2 innen und Spezies 1 außen. Dies lässt sich in dreidimensionalen Simulationen mit dem BADCOP-MD-Code nachbilden und im Experiment beobachten.

Die radiale Verteilung beider Spezies lässt sich durch eine Anpassung des horizontalen Einschlusses einstellen. Die sich einstellende Grundkonfiguration folgt einer Minimierung der gesamten potentiellen Energie (vgl. Gl. (4.2)). Bei einer gegebenen relativen spezifischen Ladung kann das Gleichgewicht aus Interpartikelwechselwirkung und Einschluss in der Falle durch die effektive Abschirmlänge λ_s und die Stärke der Falle ω_{0xy} eingestellt werden. Der zweite Parameter lässt sich unabhängig durch eine Modifizierung der Elektrode verändern. Die in dieser Arbeit vorgestellte Simulationsstudie offenbart eine homogene radiale Verteilung beider Spezies bei einer Reduktion des horizontalen Einschlusses.

Das Ladungsverhältnis der Spezies lässt sich robust und präzise aus der Konfiguration bestimmen. Die Konfigurationstemperatur ist ein Maß für die mittlere Auslenkung aller Partikel eines Ensembles aus ihrer Potentialmulde [250, 251]. Bei Kenntnis aller konservativen Kräfte kann die Temperatur eines Systems aus einem einzelnen Satz an Positionen berechnet werden. Hingegen erlaubt ein Vergleich der kinetischen Temperatur mit der Konfigurationstemperatur einen Rückschluss auf die Interpartikelkräfte in Vielteilchensystemen (vgl. Kap. 3.6). Nachdem die Methode bereits erfolgreich auf monodisperse komplexe Plasmen angewandt wurde [144, 145], konnte in dieser Arbeit das Ladungsverhältnis binärer Mischungen anhand der Konfiguration bestimmt werden (vgl. Kap. 4.4). Ein Test der Methode an Simulationsdaten zeigte einen Fehler von lediglich $\Delta(Q_{d,1}/Q_{d,2}) = \pm 1\%$. Im Gegensatz zu monodispersen Systemen hat die Wahl der Abschirmlänge einen vernachlässigbaren Einfluss auf das ermittelte Ladungsverhältnis. Eine erste Anwendung auf reale Systeme ergibt plausible Ladungsverhältnisse und ermöglicht in der Zukunft eine optimale Einstellung des Ladungsverhältnisses am Experiment.

Wechselwirkung mit Licht

Licht kann auf Mikropartikel aufgrund des Strahlungsdrucks eine nennenswerte Kraft ausüben [194, 71]. In einem Medium, z. B. einem dünnen Gas, kann eine zusätzliche indirekte Kraftwirkung durch Photophorese auftreten [189]. Die Manipulation von kleinen Partikeln mit Laserlicht ist immer dann von großem Wert, wenn kein direkter Zugang möglich ist. Für Staubpartikel in einer Plasmakammer hat sich Lasermanipulation daher als minimalinvasive Methode bewährt [267, 140, 323, 47, 224, 234, 42, 236, 198, 200]. Da die Lichtkraft auf Mikropartikel von den optischen Eigenschaften und dem Querschnitt der Partikel abhängt [193], war für binäre Mischungen ein Unterschied für die Partikelspezies zu erwarten. In Kapitel 5 dieser Arbeit wurden erste Experimente zur Manipulation von binären Mischungen mit Laser-

licht vorgestellt. Mit einer Laserheizung wurde dem System Energie zugeführt, was zu einer Erhöhung der kinetischen Temperaturen führte.

Binäre Mischungen erlauben durch die Betrachtung von relativen Größen erstmals die Messung der Komponenten der Lichtkraft. Die durch Laserlicht verursachten Kräfte auf Mikropartikel in einem Laserheizszenario konnten mithilfe eines Modells aus den kinetischen Temperaturen bestimmt werden. Die Nutzung binärer Mischungen ermöglichte eine Bestimmung des Kräfteverhältnis beider Spezies. Durch diesen Ansatz konnte eine drastische Reduzierung der unbekannten Parameter in dem Modell erreicht werden. Auf diese Weise war erstmals eine quantitative Messung die Beiträge beider Kraftkomponenten möglich. Die Messung des Kräfteverhältnisses unter Variation des Neutralgasdrucks ermöglichte zudem eine Untersuchung der Abhängigkeit dieser Kräfte vom die Partikel umgebenden Medium.

Photophorese kann einen signifikanten Beitrag zu der Laserkraft auf Partikel in komplexen Plasmen leisten. Die in Kapitel 5 vorgestellten Ergebnisse zeigen eine signifikante photophoretische Kraft für Melaminharzpartikel. Da die Ursache dieser Kraft eine Wechselwirkung mit dem umgebenen Medium ist, liegt eine Abhängigkeit vom Neutralgasdruck vor. Bereits ab einem Argongasdruck von $p = 5$ Pa beträgt die photophoretische Kraft 50 % des Strahlungsdrucks [276]. Hingegen konnte für Siliziumdioxidpartikel nur eine vernachlässigbare photophoretische Kraft gemessen werden.

In binären Mischungen lässt sich mithilfe der Laserheizung ein Zustand mit zwei Temperaturen im selben Volumen aufrecht erhalten. Die durch eine Laserheizung erhöhte kinetische Temperatur von Mikropartikeln in einem Plasma hängt von der Lichtkraft auf die Partikel ab [224, 236]. In einer binären Mischung aus unterschiedlichen Partikelsorten können die kinetischen Temperaturen sich stark unterscheiden. Für MF- und SiO₂-Partikeln ließ sich das Temperaturverhältnis über den Neutralgasdruck einstellen und somit ein interessanter Zustand für Experimente zur Thermodynamik bereitstellen.

Thermodynamik

In einer binären Mischung, bestehend aus Partikeln unterschiedlicher Größe, können die größenabhängigen Reibungskräfte [149, 134] und Heizmechanismen [283, 127, 271, 284] einen Einfluss auf die Verteilungsfunktionen dieses Systems haben. In dieser Arbeit wurde eine Laserheizung (vgl. Kap. 3.4) als ideales Wärmebad verwendet, um die thermodynamischen Eigenschaften monodisperser und binärer komplexer Plasmen anhand einer Relation von CLAUSIUS zu untersuchen (vgl. Kap. 6.1). Von hoher Bedeutung in diesen Experimenten war die genaue Bestimmung der Entropieänderung aus dem Phasenraum. In binären Mischungen konnte zusätzlich ein Bezug zu einem bekannten Gedankenexperiment zur Temperaturangleichung zweier Körper hergestellt werden.

Die Entropieänderung eines komplexen Plasmas lässt sich aus dem Phasenraum ausreichend genau bestimmen. In zweidimensionalen komplexen Plasmen kann der Phasenraum anhand der Trajektorien der Partikel vermessen werden. Aus der Änderung des Phasenraumvolumens ließ sich in dieser Arbeit die Änderung der GIBBS-Entropie bestimmen. Nach CLAUSIUS ist die Entropieänderung proportional zur Wärmeänderung in dem System. Mit $\delta Q = C\Delta T$ kann die Wärmeänderung in eine Temperaturänderung überführt werden, die im Experiment mit der Laserheizung realisiert wurde. Dadurch ließ sich die Proportionalitätskonstante C messen. Die Wärmekapazität entspricht mit exzellenter Übereinstimmung dem DULONG-PETIT-Gesetz.

Die Verteilungsfunktionen bleiben beim Übergang von monodispersen zu binären komplexen Plasmen erhalten. In Kap. 6.2 wurden Nichtgleichgewichtsphänomene und deren Auswirkung auf die Dynamik in komplexen Plasmen erläutert. So kann durch Instabilitäten oder zusätzliche Heizmechanismen dem System Energie zugeführt werden und die Geschwindigkeitsverteilungen können von MAXWELL-BOLTZMANN abweichen. In binären Mischungen kommt hinzu, dass der Größenunterschied einen Einfluss auf diese Prozesse hat. Die Experimente in dieser Arbeit zeigen, dass die Geschwindigkeitsverteilungen in binären Systemen erhalten bleibt. Eine binäre Mischung verhält sich zudem wie die Summe zweier Teilsysteme und die Entropien sind additiv. Damit bleibt die One-Component Plasma bzw. Two-Component Plasma Analogie erhalten.

In der vorliegenden Dissertation wurden die strukturellen und dynamischen Eigenschaften finiter binärer Mischungen in komplexen Plasmen untersucht. Mithilfe von Molekulardynamik-Simulationen wurden die wichtigen Einflussfaktoren auf die Struktur finiter binärer Plasmakristalle identifiziert. Mit den Erkenntnissen konnte ein Präparationsschema für zweidimensionale binäre Mischungen aufgestellt werden, das von hohem Wert für zukünftige Experimente an diesen Systemen ist. Erstmals wurde für typische Partikel in komplexen Plasmen eine photophoretische Kraft gemessen. Entscheidend hierfür war die Verwendung finiter binärer Systeme, die eine erhebliche Vereinfachung der Modellierung erlaubten. Zuletzt wurde in dieser Arbeit ein Zustand in komplexen Plasmen vorgestellt, bei dem zwei Partikelspezies im Volumen unterschiedliche kinetische Temperaturen annehmen. Zudem lässt sich das Temperaturverhältnis extern einstellen. Dieses Szenario erlaubte erste Experimente zur Thermodynamik finiter binärer Mischungen. Die Herstellung eines Bezugs zu einem bekannten Gedankenexperiment zur Temperaturangleichung zweier Körper aus Lehrbüchern zeigt erneut die Stärke dieses Modellsystems.

Abschließend soll noch ein Forschungsdesiderat angegeben werden. Nachdem in dieser Arbeit finite binäre Systeme im Vordergrund standen, sollte der nächste Schritt ein Übergang zu ausgedehnten Systemen sein. Die Wellenausbreitung in quasi-zweidimensionalen binären Mischungen zeigt bereits hoch interessante Ergebnisse [87]. In einem ausreichend großen binären Kristall mit ausreichend periodischer Verteilung der Partikelspezies sollten sich kollektive Effekte messbar ausprägen [241].

Literaturverzeichnis

- [1] S. G. BRUSH, H. L. SAHLIN and E. TELLER. *Monte Carlo Study of a One-Component Plasma. I.* J. Chem. Phys. **45**, 2102–2118 (1966).
- [2] W. L. SLATTERY, G. D. DOOLEN and H. E. DEWITT. *Improved equation of state for the classical one-component plasma.* Phys. Rev. A **21**, 2087–2095 (1980).
- [3] B. BAGCHI, C. CERJAN, U. MOHANTY and S. A. RICE. *Crystallization of the classical one-component plasma.* Phys. Rev. B **29**, 2857–2860 (1984).
- [4] G. J. KALMAN and K. I. GOLDEN. *Response function and plasmon dispersion for strongly coupled coulomb liquids.* Phys. Rev. A **41**, 5516–5527 (1990).
- [5] P. N. PUSEY and W. VAN MEGEN. *Phase behaviour of concentrated suspensions of nearly hard colloidal spheres.* Nature (1986).
- [6] H. BOROUDJERDI, Y.-W. KIM, A. NAJI, R. NETZ, X. SCHLAGBERGER and A. SERR. *Statics and dynamics of strongly charged soft matter.* Phys. Rep. **416**, 129–199 (2005).
- [7] G. BIRKL, S. KASSNER and H. WALTHER. *Multiple-shell structures of laser-cooled $^{24}\text{Mg}^+$ ions in a quadrupole storage ring.* Nature **357**, 310–313 (1992).
- [8] T. B. MITCHELL, J. J. BOLLINGER, D. H. E. DUBIN, X.-P. HUANG, W. M. ITANO and R. H. BAUGHMAN. *Direct Observations of Structural Phase Transitions in Planar Crystallized Ion Plasmas.* Science **282**, 1290–1293 (1998).
- [9] M. DREWSSEN, I. JENSEN, J. LINDBALLE, N. NISSEN, R. MARTINUSSEN, A. MORTENSEN, P. STAANUM and D. VOIGT. *Ion coulomb crystals: a tool for studying ion processes.* Int. J. Mass Spectrom. **229**, 83–91 (2003).
- [10] G. E. MORFILL and A. V. IVLEV. *Complex plasmas: An interdisciplinary research field.* Rev. Mod. Phys. **81**, 1353–1404 (2009).
- [11] M. BONITZ, C. HENNING and D. BLOCK. *Complex plasmas: A laboratory for strong correlations.* Rep. Prog. Phys. **73**, 066501 (2010).
- [12] D. BLOCK and A. MELZER. *Dusty (complex) plasmas—routes towards magnetized and polydisperse systems.* J. Phys. B: At., Mol. Opt. Phys. **52**, 063001 (2019).
- [13] R. KESAVAMOORTHY, A. K. SOOD, B. V. R. TATA and A. K. ARORA. *The split in the second peak in the structure factor of binary colloidal suspensions: glass-like order.* J. Phys. C **21**, 4737 (1988).

- [14] P. BARTLETT, R. H. OTTEWILL and P. N. PUSEY. *Superlattice formation in binary mixtures of hard-sphere colloids*. Phys. Rev. Lett. **68**, 3801–3805 (1992).
- [15] K. YOSHIKAWA, N. WAKABAYASHI, M. YONESE, J. YAMANAKA and C. P. ROYALL. *Phase separation in binary colloids with charge asymmetry*. Soft Matter **8**, 11732 (2012).
- [16] H. THOMAS, G. E. MORFILL, V. DEMMEL, J. GOREE, B. FEUERBACHER and D. MÖHLMANN. *Plasma crystal: Coulomb crystallization in a dusty plasma*. Phys. Rev. Lett. **73**, 652–655 (1994).
- [17] Y. HAYASHI and K. TACHIBANA. *Observation of Coulomb-Crystal Formation from Carbon Particles Grown in a Methane Plasma*. Jpn. J. Appl. Phys. **33**, L804 (1994).
- [18] J. CHU and L. I. *Coulomb lattice in a weakly ionized colloidal plasma*. Physica A **205**, 183–190 (1994).
- [19] R. A. QUINN, C. CUI, J. GOREE, J. B. PIEPER, H. THOMAS and G. E. MORFILL. *Structural analysis of a coulomb lattice in a dusty plasma*. Phys. Rev. E **53**, 2049–2052 (1996).
- [20] J. B. PIEPER, J. GOREE and R. A. QUINN. *Three-dimensional structure in a crystallized dusty plasma*. Phys. Rev. E **54**, 5636–5640 (1996).
- [21] D. BLOCK, M. KROLL, O. ARP, A. PIEL, S. KÄDING, Y. IVANOV, A. MELZER, C. HENNING, H. BAUMGARTNER, P. LUDWIG and M. BONITZ. *Structural and dynamical properties of yukawa balls*. Plasma Phys. Control. Fusion **49**, B109 (2007).
- [22] A. PIEL and A. MELZER. *Dynamical processes in complex plasmas*. Plasma Phys. Control. Fusion **44**, R1 (2002).
- [23] A. BOUCHOULE and L. BOUFENDI. *Particulate formation and dusty plasma behaviour in argon-silane rf discharge*. Plasma Sources Sci. Technol. **2**, 204–213 (1993).
- [24] B. TADSEN, F. GREINER, S. GROTH and A. PIEL. *Self-excited dust-acoustic waves in an electron-depleted nanodusty plasma*. Phys. Plasmas **22**, 113701 (2015).
- [25] S. GROTH, F. GREINER, B. TADSEN and A. PIEL. *Kinetic Mie ellipsometry to determine the time-resolved particle growth in nanodusty plasmas*. J. Phys. D: Appl. Phys. **48**, 465203 (9pp) (2015).
- [26] S. GROTH, F. GREINER and A. PIEL. *Spatio-temporally resolved investigations of layered particle growth in a reactive argon-acetylene plasma*. Plasma Sources Sci. Technol. **28**, 115016 (2019).
- [27] I. LANGMUIR, C. G. FOUND and A. F. DITTMER. *A NEW TYPE OF ELECTRIC DISCHARGE: THE STREAMER DISCHARGE*. Science **60**, 392 (1924).
- [28] R. L. MERLINO and J. A. GOREE. *Dusty Plasmas in the Laboratory, Industry, and Space*. Physics Today **57**, 32 (2004).
- [29] P. DEBYE and E. HÜCKEL. *Zur Theorie der Elektrolyte. I. Gefrierpunktserniedrigung und verwandte Erscheinungen*. Phys. Z. **24**, 185 (1923).

-
- [30] B. A. SMITH, L. E. SODERBLOM, R. BATSON, P. BRIDGES, J. INGE, H. MASURSKY, S. EUGENE, R. BEEBE, J. BOYCE, G. BRIGGS, A. BUNKER, S. A. COLLINS, C. J. HANSEN, T. V. JOHNSON, J. L. MITCHELL, R. J. TERRILE, A. F. COOK, J. CUZZI, J. B. POLLACK, G. E. DANIELSON, A. P. INGERSOLL, M. E. DAVIES, G. E. HUNT, D. MORRISON, T. OWEN, C. SAGAN, J. VEVERKA, R. STROM and V. E. SUOMI. *A New Look at the Saturn System: The Voyager 2 Images*. Science **215**, 504–537 (1982).
 - [31] C. K. GOERTZ and G. E. MORFILL. *A model for the formation of spokes in Saturn's ring*. Icarus **53**, 219 (1983).
 - [32] H. IKEZI. *Coulomb solid of small particles in plasmas*. Phys. Fluids **29**, 1764–1766 (1986).
 - [33] G. S. SELWYN, J. SINGH and R. S. BENNETT. *Insitu laser diagnostic studies of plasma-generated particulate contamination*. J. Vac. Sci. Techn. A **7**, 2758–2765 (1989).
 - [34] T. MISAWA, N. OHNO, K. ASANO, M. SAWAI, S. TAKAMURA and P. K. KAW. *Experimental observation of vertically polarized transverse dust-lattice wave propagating in a one-dimensional strongly coupled dust chain*. Phys. Rev. Lett. **86**, 1219–1222 (2001).
 - [35] B. LIU and J. GOREE. *Phonons in a one-dimensional yukawa chain: Dusty plasma experiment and model*. Phys. Rev. E **71**, 046410 (2005).
 - [36] J. B. PIEPER, J. GOREE and R. A. QUINN. *Experimental studies of two-dimensional and three-dimensional structure in a crystallized dusty plasma*. J. Vac. Sci. Technol. A **14**, 519–524 (1996).
 - [37] O. ARP, D. BLOCK, A. PIEL and A. MELZER. *Dust coulomb balls: Three-dimensional plasma crystals*. Phys. Rev. Lett. **93**, 165004 (2004).
 - [38] M. SCHWABE, S. KHRAPAK, S. ZHDANOV, M. PUSTYLNİK, C. RÄTH, M. FINK, M. KRETSCHMER, A. M. LIPAEV, V. I. MOLOTKOV, A. S. SCHMITZ, M. THOMA, A. D. USACHEV, A. ZOBININ, G. PADALKA, V. FORTOV, O. F. PETROV and H. M. THOMAS. *Slowing of acoustic waves in electrorheological and string-fluid complex plasmas*. New J. Phys. **22**, 083079 (2020).
 - [39] S. HAMAGUCHI and R. T. FAROUKI. *Thermodynamics of strongly-coupled Yukawa systems near the one-component-plasma limit. i. derivation of the excess energy*. J. Chem. Phys. **101**, 9876–9884 (1994).
 - [40] S. NUNOMURA, D. SAMSONOV and J. GOREE. *Transverse waves in a two-dimensional screened-coulomb crystal (dusty plasma)*. Phys. Rev. Lett. **84**, 5141–5144 (2000).
 - [41] S. ZHDANOV, S. NUNOMURA, D. SAMSONOV and G. MORFILL. *Polarization of wave modes in a two-dimensional hexagonal lattice using a complex (dusty) plasma*. Phys. Rev. E **68**, 035401 (2003).
 - [42] A. PIEL, V. NOSENKO and J. GOREE. *Laser-excited shear waves in solid and liquid two-dimensional dusty plasmas*. Phys. Plasmas **13**, 042104 (2006).
 - [43] A. MELZER, M. KLINDWORTH and A. PIEL. *Normal modes of 2D finite clusters in complex plasmas*. Phys. Rev. Lett. **87**, 115002 (2001).

- [44] T. E. SHERIDAN, C. R. BUCKEY, D. COX, R. J. MERRILL and W. L. THEISEN. *Breathing-mode resonance of a complex plasma disk*. Phys. Lett. A **329**, 88–93 (2004).
- [45] Y. IVANOV and A. MELZER. *Modes of three-dimensional dust crystals in dusty plasmas*. Phys. Rev. E **79**, 036402 (2009).
- [46] D. SAMSONOV, J. GOREE, Z. W. MA, A. BHATTACHARJEE, H. M. THOMAS and G. E. MORFILL. *Mach cones in a coulomb lattice and a dusty plasma*. Phys. Rev. Lett. **83**, 3649–3652 (1999).
- [47] A. MELZER, S. NUNOMURA, D. SAMSONOV, Z. W. MA and J. GOREE. *Laser-excited Mach cones in a dusty plasma crystal*. Phys. Rev. E **62**, 4162–4176 (2000).
- [48] V. NOSENKO, J. GOREE, Z. W. MA and A. PIEL. *Observation of Shear-Wave Mach Cones in a 2D Dusty-Plasma Crystal*. Phys. Rev. Lett. **88**, 135001 (2002).
- [49] W.-T. JUAN and L. I. *Anomalous Diffusion in Strongly Coupled Quasi-2D Dusty Plasmas*. Phys. Rev. Lett. **80**, 3073–3076 (1998).
- [50] S. NUNOMURA, D. SAMSONOV, S. ZHDANOV and G. MORFILL. *Self-diffusion in a liquid complex plasma*. Phys. Rev. Lett. **96**, 015003 (2006).
- [51] B. LIU and J. GOREE. *Superdiffusion and Non-Gaussian Statistics in a Driven-Dissipative 2D Dusty Plasma*. Phys. Rev. Lett. **100**, 055003 (2008).
- [52] L.-J. HOU, A. PIEL and P. K. SHUKLA. *Self-Diffusion in 2D Dusty-Plasma Liquids: Numerical-Simulation Results*. Phys. Rev. Lett. **102**, 085002 (2009).
- [53] V. NOSENKO and J. GOREE. *Shear flows and shear viscosity in a two-dimensional yukawa system (dusty plasma)*. Phys. Rev. Lett. **93**, 155004 (2004).
- [54] B. LIU and J. GOREE. *Shear Viscosity of Two-Dimensional Yukawa Systems in the Liquid State*. Phys. Rev. Lett. **94**, 185002 (2005).
- [55] Y. FENG, J. GOREE, B. LIU and E. G. D. COHEN. *Green-Kubo relation for viscosity tested using experimental data for a two-dimensional dusty plasma*. Phys. Rev. E **84**, 046412 (2011).
- [56] M. RUBIN-ZUZIC, G. E. MORFILL, A. V. IVLEV, R. POMPL, B. A. KLUMOV, W. BUNK, H. M. THOMAS, H. ROTHERMEL, O. HAVNES and A. FOUQUÉT. *Kinetic development of crystallization fronts in complex plasmas*. Nat. Phys. **2**, 181–185 (2006).
- [57] O. S. VAULINA, S. V. VLADIMIROV, O. F. PETROV and V. E. FORTOV. *Criteria of phase transitions in a complex plasma*. Phys. Rev. Lett. **88**, 245002 (2002).
- [58] R. ICHIKI, Y. IVANOV, M. WOLTER, Y. KAWAI and A. MELZER. *Melting and heating of two-dimensional Coulomb clusters in dusty plasmas*. Phys. Rev. E **70**, 066404 (2004).
- [59] Y. IVANOV and A. MELZER. *Melting dynamics of finite clusters in dusty plasmas*. Phys. Plasmas **12**, 072110 (2005).
- [60] A. SCHELLA, T. MIKSCH, A. MELZER, J. SCHABLINSKI, D. BLOCK, A. PIEL, H. THOMSEN, P. LUDWIG and M. BONITZ. *Melting scenarios for three-dimensional dusty plasma clusters*. Phys. Rev. E **84**, 056402 (2011).

-
- [61] A. MELZER, A. SCHELLA, T. MIKSCH, J. SCHABLINSKI, D. BLOCK, A. PIEL, H. THOMSEN, H. KÄHLERT, and M. BONITZ. *Phase transitions of finite dust clusters in dusty plasmas*. Contrib. Plasma Phys. **52**, 795–803 (2012).
 - [62] S. NUNOMURA, D. SAMSONOV, S. ZHDANOV and G. MORFILL. *Heat transfer in a two-dimensional crystalline complex (dusty) plasma*. Phys. Rev. Lett. **95**, 025003 (2005).
 - [63] V. E. FORTOV, O. S. VAULINA, O. F. PETROV, M. N. VASILIEV, A. V. GAVRIKOV, I. A. SHAKOVA, N. A. VORONA, Y. V. KHRUSTALYOV, A. A. MANOHIN and A. V. CHERNYSHEV. *Experimental study of the heat transport processes in dusty plasma fluid*. Phys. Rev. E **75**, 026403 (2007).
 - [64] V. NOSENKO, S. ZHDANOV, A. V. IVLEV, G. MORFILL, J. GOREE and A. PIEL. *Heat transport in a two-dimensional complex (dusty) plasma at melting conditions*. Phys. Rev. Lett. **100**, 025003 (2008).
 - [65] L.-J. HOU and A. PIEL. *Heat conduction in 2D strongly coupled dusty plasmas*. J. Phys. A: Math. Theor. **42**, 214025 (2009).
 - [66] C.-S. WONG, J. GOREE, Z. HARALSON and B. LIU. *Strongly coupled plasmas obey the fluctuation theorem for entropy production*. Nat. Phys. **14**, 21–24 (2018).
 - [67] M. S. BARNES, J. H. KELLER, J. C. FORSTER, J. A. O’NEILL, and D. K. COULTAS. *Transport of dust particles in glow-discharge plasmas*. Phys. Rev. Lett. **68**, 313–316 (1992).
 - [68] J. E. DAUGHERTY, R. K. PORTEOUS and D. B. GRAVES. *Electrostatic forces on small particles in low-pressure discharges*. J. Appl. Phys. **73**, 1617–1620 (1993).
 - [69] O. HAVNES, T. NITTER, V. TSYTOVICH, G. E. MORFILL and T. HARTQUIST. *On the thermophoretic force close to walls in dusty plasma experiments*. Plasma Sources Sci. Technol. **3**, 448 (1994).
 - [70] C. ZAFIU, A. MELZER and A. PIEL. *Measurement of the ion drag force on falling dust particles and its relation to the void formation in complex (dusty) plasmas*. Phys. Plasmas **10**, 1278–1282 (2003).
 - [71] B. LIU, J. GOREE, V. NOSENKO and L. BOUFENDI. *Radiation pressure and gas drag forces on a melamine-formaldehyde microsphere in a dusty plasma*. Phys. Plasmas **10**, 9–19 (2003).
 - [72] A. MELZER and M. PUTTSCHER. *Transverse forces on dust particles in a magnetized sheath with crossed electric and magnetic fields*. Phys. Plasmas **24**, 053701 (2017).
 - [73] H. M. THOMAS, D. D. GOLDBECK, T. HAGL, A. V. IVLEV, U. KONOPKA, G. E. MORFILL, H. ROTHERMEL, R. S’TTERLIN and M. ZUZIC. *Complex Plasmas under Microgravity Conditions: Parabolic Flights*. Physica Scripta **T89**, 16 (2001).
 - [74] G. E. MORFILL, U. KONOPKA, M. KRETSCHMER, M. RUBIN-ZUZIC, H. M. THOMAS, S. K. ZHDANOV and V. TSYTOVICH. *The ‘classical tunnelling effect’ - observations and theory*. New J. Phys. **8**, 06221 (2006).

- [75] C. KILLER, T. BOCKWOLDT, S. SCHÜTT, M. HIMPEL, A. MELZER and A. PIEL. *Phase separation of binary charged particle systems with small size disparities using a dusty plasma*. Phys. Rev. Lett. **116**, 115002 (2016).
- [76] S. SCHÜTT, M. HIMPEL and A. MELZER. *Experimental investigation of phase separation in binary dusty plasmas under microgravity*. Phys. Rev. E **101**, 043213 (2020).
- [77] K. R. SÜTTERLIN, A. WY SOCKI, A. V. IVLEV, C. RÄTH, H. M. THOMAS, M. RUBIN-ZUZIC, W. J. GOEDHEER, V. E. FORTOV, A. M. LIPA EV, V. I. MOLOTKOV, O. F. PETROV, G. E. MORFILL and H. LÖWEN. *Dynamics of lane formation in driven binary complex plasmas*. Phys. Rev. Lett. **102**, 085003 (2009).
- [78] L. YANG, M. SCHWABE, S. ZHDANOV, H. M. THOMAS, A. M. LIPA EV, V. I. MOLOTKOV, V. E. FORTOV, J. ZHANG and C.-R. DU. *Density waves at the interface of a binary complex plasma*. EPL (Europhysics Letters) **117**, 25001 (2017).
- [79] W. SUN, M. SCHWABE, H. M. THOMAS, A. M. LIPA EV, V. I. MOLOTKOV, V. E. FORTOV, Y. FENG, Y.-F. LIN, J. ZHANG, Y. GUO and C.-R. DU. *Dissipative solitary wave at the interface of a binary complex plasma*. EPL (Europhysics Letters) **122**, 55001 (2018).
- [80] Y. H. LIU, Z. Y. CHEN, M. Y. YU, L. WANG and A. BOGAERTS. *Structure of multispecies charged particles in a quadratic trap*. Phys. Rev. E **73**, 047402 (2006).
- [81] Y. LIU and L. Y. CHEW. *Molecular dynamics simulation of equilibrium configurations of plasmas containing multi-species dusts*. J. Phys. A: Math. Theor. **40**, 10383 (2007).
- [82] J. CARSTENSEN, H. JUNG, F. GREINER and A. PIEL. *Mass changes of microparticles in a plasma observed by a phase-resolved resonance method*. Phys. Plasmas **18**, 033701 (2011).
- [83] F. WIEBEN, J. SCHABLINSKI and D. BLOCK. *Generation of two-dimensional binary mixtures in complex plasmas*. Phys. Plasmas **24**, 033707 (2017).
- [84] M. CHAUDHURI, V. NOSENKO, C. KNAPEK, U. KONOPKA, A. V. IVLEV, H. M. THOMAS and G. E. MORFILL. *Direct experimental observation of binary agglomerates in complex plasmas*. Appl. Phys. Lett. **100**, 264101 (2012).
- [85] M. CHAUDHURI, I. SEMENOV, V. NOSENKO and H. M. THOMAS. *Quasi-two-dimensional complex plasma containing spherical particles and their binary agglomerates*. Phys. Rev. E **93**, 053202 (2016).
- [86] C.-R. DU, V. NOSENKO, H. M. THOMAS, Y.-F. LIN, G. E. MORFILL and A. V. IVLEV. *Slow Dynamics in a Quasi-Two-Dimensional Binary Complex Plasma*. Phys. Rev. Lett. **123**, 185002 (2019).
- [87] H. HUANG, A. V. IVLEV, V. NOSENKO, Y.-F. LIN and C.-R. DU. *Wave spectra of square-lattice domains in a quasi-two-dimensional binary complex plasma*. Phys. Plasmas **26**, 013702 (2019).
- [88] MEICHSNER, JÜRGEN, BONITZ, MICHAEL, FEHSKE, HOLGER and PIEL, ALEXANDER. *The Transregional Collaborative Research Centre "Fundamentals of Complex Plasmas"(Greifswald - Kiel)*. Eur. Phys. J. D **72**, 94 (2018).

-
- [89] A. PIEL, D. BLOCK, A. MELZER, M. MULSOW, J. SCHABLINSKI, A. SCHELLA, F. WIEBEN and J. WILMS. *Microphysics of liquid complex plasmas in equilibrium and non-equilibrium systems*. Eur. Phys. J. D **72**, 80 (2018).
 - [90] M. A. LIEBERMAN and A. J. LICHTENBERG. *Principles of Plasma Discharges and Materials Processing*, (Wiley, 2. Auflage, 2005).
 - [91] A. PIEL. *Plasma Physics - An Introduction to Laboratory, Space, and Fusion Plasmas*, (Springer Verlag, 2010).
 - [92] A. MELZER. *Physics of Dusty Plasmas: An Introduction*, (Springer International Publishing, 2019).
 - [93] H. YUKAWA. *On the interaction of elementary particles. i.* Nippon Sugaku-Buturigakkwai Kizi Dai 3 Ki **17**, 48–57 (1935).
 - [94] I. H. HUTCHINSON. *Collisionless ion drag force on a spherical grain*. Plasma Phys. Controlled Fusion **48**, 185 (2006).
 - [95] D. H. E. DUBIN and T. M. O’NEIL. *Trapped nonneutral plasmas, liquids, and crystals (the thermal equilibrium states)*. Rev. Mod. Phys. **71**, 87–172 (1999).
 - [96] S. ICHIMARU. *Strongly coupled plasmas: High-density classical plasmas and degenerate electron liquids*. Rev. Mod. Phys. **54**, 1017–1056 (1982).
 - [97] M. W. COLE. *Electronic surface states of liquid helium*. Rev. Mod. Phys. **46**, 451–464 (1974).
 - [98] C. GRIMES. *Electrons in surface states on liquid helium*. Surface Science **73**, 379–395 (1978).
 - [99] G. E. MORFILL, A. V. IVLEV and H. M. THOMAS. *Complex (dusty) plasmas - kinetic studies of strong coupling phenomena*. Phys. Plasmas **19**, 055402 (2012).
 - [100] O. S. VAULINA and S. A. KHRAPAK. *Scaling law for the fluid-solid phase transition in Yukawa systems (dusty plasmas)*. J. Exp. Theor. Phys. **90**, 287–289 (2000).
 - [101] P. HARTMANN, G. J. KALMAN, Z. DONKÓ and K. KUTASI. *Equilibrium properties and phase diagram of two-dimensional Yukawa systems*. Phys. Rev. E **72**, 026409 (2005).
 - [102] T. OTT, M. BONITZ, L. G. STANTON and M. S. MURILLO. *Coupling strength in Coulomb and Yukawa one-component plasmas*. Phys. Plasmas **21**, 113704 (2014).
 - [103] M. O. ROBBINS, K. KREMER and G. S. GREST. *Phase diagram and dynamics of yukawa systems*. J. Chem. Phys. **88**, 3286–3312 (1988).
 - [104] R. T. FAROUKI and S. HAMAGUCHI. *Thermodynamics of strongly-coupled Yukawa systems near the one-component-plasma limit. II. Molecular dynamics simulations*. J. Chem. Phys. **101**, 9885–9893 (1994).
 - [105] S. HAMAGUCHI, R. T. FAROUKI and D. H. E. DUBIN. *Triple point of Yukawa systems*. Phys. Rev. E **56**, 4671–4682 (1997).
 - [106] H. TOTSUJI, C. TOTSUJI and K. TSURUTA. *Structure of finite two-dimensional Yukawa lattices: Dust crystals*. Phys. Rev. E **64**, 066402 (2001).

- [107] B. A. KLUMOV. *On the Effect of Confinement on the Structure of a Complex (Dusty) Plasma*. JETP Letters **110**, 715–721 (2019).
- [108] X. WANG, A. BHATTACHARJEE and S. HU. *Longitudinal and Transverse Waves in Yukawa Crystals*. Phys. Rev. Lett. **86**, 2569–2572 (2001).
- [109] S. NUNOMURA, J. GOREE, S. HU, X. WANG and A. BHATTACHARJEE. *Dispersion relations of longitudinal and transverse waves in two-dimensional screened Coulomb crystals*. Phys. Rev. E **65**, 066402 (2002).
- [110] J. GOREE. *Charging of particles in a plasma*. Plasma Sources Sci. Technol. **3**, 400–406 (1994).
- [111] H. M. MOTT-SMITH and I. LANGMUIR. *The theory of collectors in gaseous discharges*. Phys. Rev. **28**, 727–763 (1926).
- [112] J. E. ALLEN. *Probe theory - the orbital motion approach*. Phys. Scr. **45**, 497 (1992).
- [113] J. E. ALLEN, R. L. F. BOYD and P. REYNOLDS. *The collection of positive ions by a probe immersed in a plasma*. Proc. Phys. Soc. B **70**, 297 (1957).
- [114] I. H. HUTCHINSON and L. PATACCINI. *Flowing plasmas and absorbing objects: analytic and numerical solutions culminating 80 years of ion-collection theory*. Plasma Phys. Controlled Fusion **52**, 124005 (2010).
- [115] E. C. WHIPPLE. *Potentials of surfaces in space*. Rep. Prog. Phys. **44**, 1197–1243 (1981).
- [116] J. GOREE. *Ion trapping by a charged dust grain in a plasma*. Phys. Rev. Lett. **69**, 277–280 (1992).
- [117] A. V. ZOBININ, A. P. NEFEDOV, V. A. SINEL'SHCHIKOV and V. E. FORTOV. *On the charge of dust particles in a low-pressure gas discharge plasma*. J. Exp. Theor. Phys. **91**, 483–487 (2000).
- [118] M. LAMPE, V. GAVRISHCHAKA, G. GANGULI and G. JOYCE. *Effect of trapped ions on shielding of a charged spherical object in a plasma*. Phys. Rev. Lett. **86**, 5278–5281 (2001).
- [119] M. LAMPE, R. GOSWAMI, Z. STERNOVSKY, S. ROBERTSON, V. G. G. GANGULI and G. JOYCE. *Trapped ion effect on shielding, current flow, and charging of a small object in a plasma*. Phys. Plasmas **10**, 1500 (2003).
- [120] S. A. KHRAPAK, S. V. RATYNSKAIA, A. V. ZOBININ, A. D. USACHEV, V. V. YAROSHENKO, M. H. THOMA, M. KRETSCHMER, H. HÖFNER, G. E. MORFILL, O. F. PETROV and V. E. FORTOV. *Particle charge in the bulk of gas discharges*. Phys. Rev. E **72**, 016406 (2005).
- [121] S. A. KHRAPAK, G. E. MORFILL, A. G. KHRAPAK and L. G. D'YACHKOV. *Charging properties of a dust grain in collisional plasmas*. Phys. Plasmas **13**, 052114 (2006).
- [122] I. H. HUTCHINSON and L. PATACCINI. *Computation of the effect of neutral collisions on ion current to a floating sphere in a stationary plasma*. Phys. Plasmas **14**, 013505 (2007).

-
- [123] S. A. KHRAPAK and G. E. MORFILL. *An interpolation formula for the ion flux to a small particle in collisional plasmas*. Phys. Plasmas **15**, 114503 (2008).
 - [124] L.-J. HOU, Y.-N. WANG and Z. L. MIŠKOVIĆ. *Induced potential of a dust particle in a collisional radio-frequency sheath*. Phys. Rev. E **68**, 016410 (2003).
 - [125] I. H. HUTCHINSON. *Ion collection by a sphere in a flowing plasma: 3. Floating potential and drag force*. Plasma Phys. Controlled Fusion **47**, 71 (2005).
 - [126] V. R. IKKURTHI, K. MATYASH, A. MELZER and R. SCHNEIDER. *Computation of dust charge and potential on a static spherical dust grain immersed in rf discharges*. Phys. Plasmas **15**, 123704 (2008).
 - [127] A. PIEL and C. SCHMIDT. *Dust charging and charge fluctuations in a weakly collisional radio-frequency sheath at low pressure*. Phys. Plasmas **22**, 053701 (2015).
 - [128] M. BACHARIS, M. COPPINS and J. E. ALLEN. *Dust grain charging in RF discharges*. Plasma Sources Sci. Technol. **19**, 025002 (2010).
 - [129] J. SCHLEEDE, L. LEWERENTZ, F. X. BRONOLD, R. SCHNEIDER and H. FEHSKE. *Plasma flow around and charge distribution of a dust cluster in a rf discharge*. Phys. Plasmas **25**, 043702 (2018).
 - [130] F. X. BRONOLD and H. FEHSKE. *Microscopic theory of electron absorption by plasma-facing surfaces*. Plasma Phys. Controlled Fusion **59**, 014011 (2016).
 - [131] A. MELZER, T. TROTTENBERG and A. PIEL. *Experimental determination of the charge on dust particles forming Coulomb lattices*. Phys. Lett. A **191**, 301–308 (1994).
 - [132] T. TROTTENBERG, A. MELZER and A. PIEL. *Measurement of the electric charge on particulates forming Coulomb crystals in the sheath of a radiofrequency plasma*. Plasma Sources Sci. Technol. **4**, 450–458 (1995).
 - [133] A. HOMANN, A. MELZER and A. PIEL. *Measuring the charge on single particles by laser-excited resonances in plasma crystals*. Phys. Rev. E **59**, 3835–3838 (1999).
 - [134] H. JUNG, F. GREINER, O. H. ASNAZ, J. CARSTENSEN and A. PIEL. *Resonance methods for the characterization of dust particles in plasmas*. J. Plasma Phys. **82**, 615820301 (2016).
 - [135] O. H. ASNAZ, H. JUNG, F. GREINER and A. PIEL. *Charging of an irregularly shaped particle in the sheath of an rf plasma*. Phys. Plasmas **25**, 073702 (2018).
 - [136] A. MELZER. *Mode spectra of thermally excited two-dimensional dust Coulomb clusters*. Phys. Rev. E **67**, 016411 (2003).
 - [137] T. E. SHERIDAN. *Center-of-mass and breathing oscillations in small complex plasma disks*. Phys. Rev. E **72**, 026405 (2005).
 - [138] A. MELZER, A. SCHELLA, J. SCHABLINSKI, D. BLOCK and A. PIEL. *Instantaneous normal mode analysis of melting of finite dust clusters*. Phys. Rev. Lett. **108**, 225001 (2012).
 - [139] S. NUNOMURA, J. GOREE, S. HU, X. WANG, A. BHATTACHARJEE and K. AVINASH. *Phonon spectrum in a plasma crystal*. Phys. Rev. Lett. **89**, 035001 (2002).

- [140] A. HOMANN, A. MELZER, S. PETERS, R. MADANI and A. PIEL. *Laser-excited dust lattice waves in plasma crystals*. Phys. Lett. A **242**, 173–180 (1998).
- [141] A. SAMARIAN and B. JAMES. *Sheath measurement in rf-discharge plasma with dust grains*. Phys. Lett. A **287**, 125 (2001).
- [142] G. A. HEBNER, M. E. RILEY, D. S. JOHNSON, P. HO and R. J. BUSS. *Direct Determination of Particle-Particle Interactions in a 2D Plasma Dust Crystal*. Phys. Rev. Lett. **87**, 235001 (2001).
- [143] C. TOTSUJI, M. S. LIMAN, K. TSURUTA and H. TOTSUJI. *Estimation of screening length and electric charge on particles in single-layered dusty plasma crystals*. Phys. Rev. E **68**, 017401 (2003).
- [144] M. HIMPEL and A. MELZER. *Configurational temperature in dusty plasmas*. Phys. Rev. E **99**, 063203 (2019).
- [145] M. HIMPEL and A. MELZER. *Erratum: Configurational temperature in dusty plasmas [Phys. Rev. E 99, 063203 (2019)]*. Phys. Rev. E **101**, 029902 (2020).
- [146] R. L. HEINISCH, F. X. BRONOLD and H. FEHSKE. *Optical signatures of the charge of a dielectric particle in a plasma*. Phys. Rev. E **88**, 023109 (2013).
- [147] H. KRÜGER, C. KILLER, S. SCHÜTT and A. MELZER. *Characterization of injected aluminum oxide nanoparticle clouds in an rf discharge*. Plasma Sources Sci. Technol. **27**, 025004 (2018).
- [148] D. W. BRECK. *Zeolite Molecular Sieves: Structure, Chemistry, and Use*, (New York: Wiley, 1974).
- [149] P. S. EPSTEIN. *On the resistance experienced by spheres in their motion through gases*. Phys. Rev. **23**, 710–733 (1924).
- [150] J. CARSTENSEN, F. HAASE, H. JUNG, B. TADSEN, S. GROTH, F. GREINER and A. PIEL. *Probing the plasma sheath by the continuous mass loss of microparticles*. IEEE Trans. Plasma Sci. **41**, 764–768 (2013).
- [151] U. KONOPKA, G. E. MORFILL and L. RATKE. *Measurement of the interaction potential of microspheres in the sheath of a rf discharge*. Phys. Rev. Lett. **84**, 891–894 (2000).
- [152] I. H. HUTCHINSON. *Particle in cell calculation of plasma force on a small grain in a non-uniform collisional sheath*. Plasma Phys. Control. Fusion **55**, 115014 (2013).
- [153] S. A. KHRAPAK, A. V. IVLEV, G. E. MORFILL and H. M. THOMAS. *Ion drag force in complex plasmas*. Phys. Rev. E **66**, 046414 (2002).
- [154] S. A. KHRAPAK, A. V. IVLEV, G. E. MORFILL and S. K. ZHDANOV. *Scattering in the Attractive Yukawa Potential in the Limit of Strong Interaction*. Phys. Rev. Lett. **90**, 225002 (2003).
- [155] A. V. IVLEV, S. A. KHRAPAK, S. K. ZHDANOV, G. E. MORFILL and G. JOYCE. *Force on a charged test particle in a collisional flowing plasma*. Phys. Rev. Lett. **92**, 205007 (2004).

-
- [156] I. H. HUTCHINSON and C. B. HAAKONSEN. *Collisional effects on nonlinear ion drag force for small grains*. Phys. Plasmas **20**, 083701 (2013).
 - [157] L. PATACCHINI and I. H. HUTCHINSON. *Fully Self-Consistent Ion-Drag-Force Calculations for Dust in Collisional Plasmas with an External Electric Field*. Phys. Rev. Lett. **101**, 025001 (2008).
 - [158] S. A. KHRAPAK and G. E. MORFILL. *Dusty plasmas in a constant electric field: Role of the electron drag force*. Phys. Rev. E **69**, 066411 (2004).
 - [159] G. M. JELLUM, J. E. DAUGHERTY and D. B. GRAVES. *Particle thermophoresis in low pressure glow discharges*. J. Appl. Phys. **69**, 6923–6934 (1991).
 - [160] L. WALDMANN. *Über die Kraft eines inhomogenen Gases auf kleine suspendierte Kugeln*. Z. Naturforsch. **14**, 589–599 (1959).
 - [161] A. EINSTEIN. *Zur Theorie der Radiometerkräfte*. Z. Phys. **27**, 1–6 (1924).
 - [162] V. V. BALABANOV, L. M. VASILYAK, S. P. VETCHININ, A. P. NEFEDOV, D. N. POLYAKOV and V. E. FORTOV. *The effect of the gas temperature gradient on dust structures in a glow-discharge plasma*. J. Exp. Theor. Phys. **92**, 86–92 (2001).
 - [163] L. M. VASILYAK, S. P. VETCHININ, D. N. POLYAKOV and V. E. FORTOV. *Formation of complex structures in dusty plasmas under temperature gradients*. J. Exp. Theor. Phys. **100**, 1029–1034 (2005).
 - [164] R. A. MILLIKAN. *The Isolation of an Ion, a Precision Measurement of its Charge, and the Correction of Stokes’s Law*. Phys. Rev. (Series I) **32**, 349–397 (1911).
 - [165] E. B. TOMME, D. A. LAW, B. M. ANNARATONE and J. E. ALLEN. *Parabolic plasma sheath potentials and their implications for the charge on levitated dust particles*. Phys. Rev. Lett. **85**, 2518–2521 (2000).
 - [166] L.-J. HOU, Y.-N. WANG and Z. L. MIŠKOVIĆ. *Two-dimensional radio-frequency sheath dynamics over a nonflat electrode with perpendicular magnetic field*. Phys. Plasmas **11**, 4456–4461 (2004).
 - [167] T. E. SHERIDAN. *Calculation of two-dimensional plasma sheath with application to radial dust oscillations*. J. Appl. Phys. **98**, 023302 (2005).
 - [168] G. A. HEBNER, M. E. RILEY and K. E. GREENBERG. *Analysis of the particle interactions in a two-dimensional-plasma dust crystal and the use of dust as a probe of the time-averaged presheath electric field*. Phys. Rev. E **66**, 046407 (2002).
 - [169] M. BONITZ, D. BLOCK, O. ARP, V. GOLUBNYCHIY, H. BAUMGARTNER, P. LUDWIG, A. PIEL and A. FILINOV. *Structural properties of screened Coulomb balls*. Phys. Rev. Lett. **96**, 075001 (2006).
 - [170] P. LUDWIG, W. J. MILOCH, H. KÄHLERT and M. BONITZ. *On the wake structure in streaming complex plasmas*. New J. Phys. **14**, 053016 (2012).
 - [171] D. BLOCK, J. CARSTENSEN, P. LUDWIG, W. MILOCH, F. GREINER, A. PIEL, M. BONITZ and A. MELZER. *Wake formation and wake field effects in complex plasmas*. Contrib. Plasma Phys. **52**, 804–812 (2012).

- [172] H. JUNG, F. GREINER, O. H. ASNAZ, J. CARSTENSEN and A. PIEL. *Exploring the wake of a dust particle by a continuously approaching test grain*. Phys. Plasmas **22**, 053702 (2015).
- [173] I. H. HUTCHINSON. *Intergrain forces in low-mach-number plasma wakes*. Phys. Rev. E **85**, 066409 (2012).
- [174] D. BLOCK and W. J. MILOCH. *Charging of multiple grains in subsonic and supersonic plasma flows*. Plasma Phys. Controlled Fusion **57**, 014019 (2015).
- [175] A. V. IVLEV, J. BARTNICK, M. HEINEN, C.-R. DU, V. NOSENKO and H. LÖWEN. *Statistical Mechanics where Newton's Third Law is Broken*. Phys. Rev. X **5**, 011035 (2015).
- [176] A. MELZER, A. SCHELLA and M. MULSOW. *Nonequilibrium finite dust clusters: Connecting normal modes and wakefields*. Phys. Rev. E **89**, 013109 (2014).
- [177] V. NOSENKO, A. V. IVLEV, S. K. ZHDANOV, M. FINK and G. E. MORFILL. *Rotating electric fields in complex (dusty) plasmas*. Phys. Plasmas **16**, 083708 (2009).
- [178] L. WÖRNER, V. NOSENKO, A. V. IVLEV, S. K. ZHDANOV, H. M. THOMAS, G. E. MORFILL, M. KROLL, J. SCHABLINSKI, and D. BLOCK. *Effect of rotating electric field on 3D complex (dusty) plasma*. Phys. Plasmas **18**, 063706 (2011).
- [179] N. SATO, G. UCHIDA, T. KANEKO, S. SHIMIZU and S. IIZUKA. *Dynamics of fine particles in magnetized plasmas*. Phys. Plasmas **8**, 1786 (2001).
- [180] L.-J. HOU, Y.-N. WANG and Z. L. MIŠKOVIĆ. *Formation and rotation of two-dimensional Coulomb crystals in magnetized complex plasma*. Phys. Plasmas **12**, 042104 (2005).
- [181] J. CARSTENSEN, F. GREINER, L.-J. HOU, H. MAURER and A. PIEL. *Effect of neutral gas motion on the rotation of dust clusters in an axial magnetic field*. Phys. Plasmas **16**, 013702 (2009).
- [182] M. PUTTSCHER and A. MELZER. *Vertically aligned dust particles under the influence of crossed electric and magnetic fields in the sheath of a radio frequency discharge*. Phys. Plasmas **22**, 073701 (2015).
- [183] A. MELZER, H. KRÜGER, S. SCHÜTT and M. MULSOW. *Finite dust clusters under strong magnetic fields*. Phys. Plasmas **26**, 093702 (2019).
- [184] A. MELZER, H. KRÜGER, S. SCHÜTT and M. MULSOW. *Dust-density waves in radio-frequency discharges under magnetic fields*. Phys. Plasmas **27**, 033704 (2020).
- [185] J. C. MAXWELL. *A Treatise on Electricity and Magnetism*. 391, (Oxford Univ. Press 1873), 1 edition.
- [186] A. BARTOLI. *Il calorico raggiante e il secondo principio di termodinamica*. Nuovo Cim **15**, 193–202 (1884).
- [187] E. F. NICHOLS and G. F. HULL. *A preliminary communication on the pressure of heat and light radiation*. Phys. Rev. (Series I) **13**, 307–320 (1901).

-
- [188] P. LEBEDEW. *Untersuchungen über die Druckkräfte des Lichtes*. Ann. Phys. **311**, 433–458 (1901).
- [189] F. EHRENHAFT. *Die Photophorese*. Ann. Phys. **361**, 81–132 (1918).
- [190] I. PARANKIEWICZ. *Über die lichtpositive und die lichtnegative Photophorese*. Ann. Phys. **362**, 489–518 (1918).
- [191] G. MIE. *Beiträge zur Optik trüber Medien, speziell kolloidaler Metallösungen*. Ann. Phys. **330**, 377–445 (1908).
- [192] H. VAN DE HULST. *Light Scattering by Small Particles*. Dover Books on Physics, (Dover Publications, 1957).
- [193] C. BOHREN and D. R. HUFFMAN. *Absorption and Scattering of Light by Small Particles*, (Wiley Science Paperback Series, 1998).
- [194] A. ASHKIN. *Acceleration and trapping of particles by radiation pressure*. Phys. Rev. Lett. **24**, 156–159 (1970).
- [195] D. G. GRIER. *A revolution in optical manipulation*. Nature **424**, 810–816 (2003).
- [196] J. R. MOFFITT, Y. R. CHEMLA, S. B. SMITH and C. BUSTAMANTE. *Recent Advances in Optical Tweezers*. Annu. Rev. Biochem. **77**, 205–228 (2008).
- [197] OFFIZIELLE WEBSEITE DES NOBELPREISES. *Nobelpreis in Physik 2018*. Online verfügbar unter <https://www.nobelprize.org/prizes/physics/2018/summary/> (2018–2020).
- [198] J. SCHABLINSKI, F. WIEBEN and D. BLOCK. *An optical tweezer for complex plasmas*. Phys. Plasmas **22**, 043703 (2015).
- [199] D. BLOCK, F. WIEBEN and J. SCHABLINSKI. *Mode excitation in finite dust clusters using an optical trap*. IEEE Trans. Plasma Sci. **44**, 479–482 (2016).
- [200] V. SCHNEIDER and H. KERSTEN. *An optical trapping system for particle probes in plasma diagnostics*. Rev. Sci. Instrum. **89**, 103505 (2018).
- [201] C. MÄTZLER. *MATLAB Functions for Mie Scattering and Absorption*. Online verfügbar unter <https://omlc.org/software/mie/> (2002).
- [202] H. M. LAI, W. Y. WONG and W. H. WONG. *Extinction paradox and actual power scattered in light beam scattering: a two-dimensional study*. J. Opt. Soc. Am. A **21**, 2324–2333 (2004).
- [203] M. BERG, C. SORENSSEN and A. CHAKRABARTI. *A new explanation of the extinction paradox*. J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer **112**, 1170–1181 (2011).
- [204] P. DEBYE. *Der Lichtdruck auf Kugeln von beliebigem Material*. Ph.D. thesis, Ludwig-Maximilians-Universität zu München (1908).
- [205] MICROPARTICLES GMBH. *Liste der Partikeleigenschaften*. Online verfügbar unter <https://microparticles.de/eigenschaften> (2020).
- [206] L. SCHEPERS, J. BECKERS and W. IJZERMAN. *Determination of microparticle characteristics in an etching plasma*. Contrib. Plasma Phys. **0**, 1–10 (2018).

- [207] N. KOHLMANN, F. WIEBEN, O. H. ASNAZ, D. BLOCK and F. GREINER. *High-precision in-situ size measurements of single microparticles in an RF plasma*. Phys. Plasmas **26**, 053701 (2019).
- [208] A. RUBINOWICZ. *Radiometerkräfte und Ehrenhaftsche Photophorese*. Ann. Phys. **367**, 691–715 (1920).
- [209] G. LASKI and F. ZERNER. *Theorie der Radiometerwirkung*. Z. Phys. **3**, 224–242 (1920).
- [210] G. HETTNER. *Zur Theorie der Photophorese*. Z. Phys. **37**, 179–192 (1926).
- [211] G. M. HIDY and J. R. BROCK. *Photophoresis and the descent of particles into the lower stratosphere*. J. Geophys. Res. **72**, 455–460 (1967).
- [212] H. ROHATSCHEK. *Levitation of stratospheric and mesospheric aerosols by gravito-photophoresis*. J. Aerosol Sci. **27**, 467–475 (1996).
- [213] A. CHEREMISIN, Y. VASSILYEV and H. HORVATH. *Gravito-photophoresis and aerosol stratification in the atmosphere*. J. Aerosol Sci. **36**, 1277–1299 (2005).
- [214] D. W. KEITH. *Photophoretic levitation of engineered aerosols for geoengineering*. PNAS **107**, 16428–16431 (2010).
- [215] I. VON BORSTEL and J. BLUM. *Photophoresis of dust aggregates in protoplanetary disks*. Astron. Astrophys. **548**, A96 (2012).
- [216] C. HAISCH, C. KYKAL and R. NIESSNER. *Photophoretic velocimetry for the characterization of aerosols*. Anal. Chem. **80**, 1546–1551 (2008).
- [217] C. HELMBRECHT, R. NIESSNER and C. HAISCH. *Photophoretic velocimetry - a new way for the in situ determination of particle size distribution and refractive index of hydrocolloids*. Analyst **136**, 1987–1994 (2011).
- [218] M. LEWITTES, S. ARNOLD and G. OSTER. *Radiometric levitation of micron sized spheres*. Appl. Phys. Lett. **40**, 455–457 (1982).
- [219] V. SHVEDOV, A. DAVOYAN, C. HNATOVSKY, N. ENGHETA and W. KROLIKOWSKI. *A long-range polarization-controlled optical tractor beam*. Nat. Photonics **8**, 846–850 (2014).
- [220] O. PREINING. *Photophoresis in Aerosol Science*, (Academic Press, New York 1996).
- [221] S. BERESNEV, V. CHERNYAK and G. FOMYAGIN. *Photophoresis of a spherical particle in a rarefied gas*. Phys. Fluids A **5**, 2043–2052 (1993).
- [222] C. LOESCHE, G. WURM, T. JANKOWSKI and M. KUEPPER. *Photophoresis on particles hotter/colder than the ambient gas in the free molecular flow*. J. Aerosol Sci. **97**, 22 – 33 (2016).
- [223] H. CZICHOS, B. SKROTZKI and F. G. SIMON. *Das Ingenieurwissen: Werkstoffe*, (Springer Vieweg, 2014).
- [224] M. WOLTER and A. MELZER. *Laser heating of particles in dusty plasmas*. Phys. Rev. E **71**, 036414 (2005).

-
- [225] Y. I. YALAMOV, V. B. KUTUKOV and E. R. SHCHUKIN. *Motion of small aerosol particle in a light field*. J. Eng. Phys. Thermophys. **30**, 648–652 (1976).
 - [226] P. W. DUSEL, M. KERKER and D. D. COOKE. *Distribution of absorption centers within irradiated spheres*. J. Opt. Soc. Am. **69**, 55–59 (1979).
 - [227] W. M. GREENE, R. E. SPJUT, E. BAR-ZIV, A. F. SAROFIM and J. P. LONGWELL. *Photophoresis of irradiated spheres: absorption centers*. J. Opt. Soc. Am. B **2**, 998–1004 (1985).
 - [228] D. MACKOWSKI. *Photophoresis of aerosol particles in the free molecular and slip-flow regimes*. Int. J. Heat Mass Transfer **32**, 843–854 (1989).
 - [229] Y. FENG, J. GOREE and B. LIU. *Accurate particle position measurement from images*. Rev. Sci. Instrum. **78**, 053704 (2007).
 - [230] Y. IVANOV and A. MELZER. *Particle positioning techniques for dusty plasma experiments*. Rev. Sci. Instrum. **78**, 033506 (2007).
 - [231] D. P. MOHR, C. A. KNAPEK, P. HUBER and E. ZAEHRINGER. *Algorithms for Particle Detection in Complex Plasmas*. J. Imaging **5** (2019).
 - [232] E. B. TOMME, B. M. ANNARATONE and J. E. ALLEN. *Damped dust oscillations as a plasma sheath diagnostic*. Plasma Sources Sci. Technol. **9**, 87–96 (2000).
 - [233] J. CARSTENSEN, F. GREINER, D. BLOCK, J. SCHABLINSKI, W. J. MILOCH, and A. PIEL. *Charging and coupling of a vertically aligned particle pair in the plasma sheath*. Phys. Plasmas **19**, 033702 (2012).
 - [234] V. NOSENKO, J. GOREE and A. PIEL. *Laser method of heating monolayer dusty plasmas*. Phys. Plasmas **13**, 032106 (2006).
 - [235] Z. HARALSON and J. GOREE. *Laser Heating of 2-D Dusty Plasmas Using a Random Arc Pattern*. IEEE Trans. Plasma Sci. **44**, 549–552 (2016).
 - [236] J. SCHABLINSKI, D. BLOCK, A. PIEL, A. MELZER, H. THOMSEN, H. KÄHLERT and M. BONITZ. *Laser heating of finite two-dimensional dust clusters: A. Experiments*. Phys. Plasmas **19**, 013705 (2012).
 - [237] J. SCHABLINSKI. *Kontrolle von Struktur und Dynamik finiter Plasmakristalle*. Ph.D. thesis, Christian-Albrechts-Universität zu Kiel (2015).
 - [238] J. A. DROCCO, C. J. O. REICHHARDT, C. REICHHARDT and B. JANKÓ. *Structure and melting of two-species charged clusters in a parabolic trap*. Phys. Rev. E **68**, 060401(R) (2003).
 - [239] W. P. FERREIRA, F. F. MUNARIN, K. NELISSEN, R. N. C. FILHO, F. M. PEETERS and G. A. FARIAS. *Structure, normal mode spectra, and mixing of a binary system of charged particles confined in a parabolic trap*. Phys. Rev. E **72**, 021406 (2005).
 - [240] G. J. KALMAN, Z. DONKÓ, P. HARTMANN and K. I. GOLDEN. *Strong Coupling Effects in Binary Yukawa Systems*. Phys. Rev. Lett. **107**, 175003 (2011).
 - [241] G. J. KALMAN, P. HARTMANN, Z. DONKÓ, K. I. GOLDEN and S. KYRKOS. *Collective modes in two-dimensional binary Yukawa systems*. Phys. Rev. E **87**, 043103 (2013).

- [242] T. OTT, H. LÖWEN and M. BONITZ. *Dynamics of two-dimensional one-component and binary Yukawa systems in a magnetic field*. Phys. Rev. E **89**, 013105 (2014).
- [243] J. NICKOLLS, I. BUCK, M. GARLAND and K. SKADRON. *Scalable Parallel Programming with CUDA*. Queue **6**, 40–53 (2008).
- [244] L. VERLET. *Computer "Experiments" on Classical Fluids. I. Thermodynamical Properties of Lennard-Jones Molecules*. Phys. Rev. **159**, 98–103 (1967).
- [245] W. C. SWOPE, H. C. ANDERSEN, P. H. BERENS and K. R. WILSON. *A computer simulation method for the calculation of equilibrium constants for the formation of physical clusters of molecules: Application to small water clusters*. J. Chem. Phys. **76**, 637 (1982).
- [246] R. KUBO. *The fluctuation-dissipation theorem*. Rep. Prog. Phys. **29**, 255–284 (1966).
- [247] N. GRØNBECH-JENSEN and O. FARAGO. *A simple and effective Verlet-type algorithm for simulating Langevin dynamics*. Mol. Phys. **111**, 983–991 (2013).
- [248] E. VANDEN-EIJNDEN and G. CICCOTTI. *Second-order integrators for Langevin equations with holonomic constraints*. Chem. Phys. Lett. **429**, 310–316 (2006).
- [249] O. H. ASNAZ, H. JUNG, F. GREINER and A. PIEL. *Size and density evolution of a single microparticle embedded in a plasma*. Phys. Plasmas **24**, 083701 (2017).
- [250] B. D. BUTLER, G. AYTON, O. G. JEPPI and D. J. EVANS. *Configurational temperature: Verification of Monte Carlo simulations*. J. Chem. Phys. **109**, 6519–6522 (1998).
- [251] H. H. RUGH. *Dynamical Approach to Temperature*. Phys. Rev. Lett. **78**, 772–774 (1997).
- [252] O. VAULINA, S. KHRAPAK and G. MORFILL. *Universal scaling in complex (dusty) plasmas*. Phys. Rev. E **66**, 016404 (2002).
- [253] C.-R. DU, K. R. SÜTTERLIN, A. V. IVLEV, H. M. THOMAS and G. E. MORFILL. *Model experiment for studying lane formation in binary complex plasmas*. Europhys. Lett. **99**, 45001 (2012).
- [254] A. V. IVLEV and R. KOMPANEETS. *Instabilities in bilayer complex plasmas: Wake-induced mode coupling*. Phys. Rev. E **95**, 053202 (2017).
- [255] I. V. SCHWEIGERT, V. A. SCHWEIGERT, A. MELZER and A. PIEL. *Melting of dust plasma crystals with defects*. Phys. Rev. E **62**, 1238–1244 (2000).
- [256] C. KILLER, M. MULSOW and A. MELZER. *Spatio-temporal evolution of the dust particle size distribution in dusty argon rf plasmas*. Plasma Sources Sci. Technol. **24**, 025029 (2015).
- [257] J. PAVLŮ, A. VELYHAN, I. RICHTEROVÁ, Z. NĚMEČEK, J. ŠAFRÁNKOVÁ, I. ČERMÁK and P. ŽILAVÝ. *Mass-Loss Rate for MF Resin Microspheres*. IEEE Trans. Plasma Sci. **32**, 704–708 (2004).
- [258] J. W. CAHN. *Phase separation by spinodal decomposition in isotropic systems*. J. Chem. Phys. **42**, 93–99 (1965).

-
- [259] J. S. HUANG, W. I. GOLDBURG and A. W. BJERKAAS. *Study of phase separation in a critical binary liquid mixture: Spinodal decomposition*. Phys. Rev. Lett. **32**, 921–923 (1974).
 - [260] P. GUENOUN, R. GASTAUD, F. PERROT and D. BEYSENS. *Spinodal decomposition patterns in an isodensity critical binary fluid: Direct-visualization and light-scattering analyses*. Phys. Rev. A **36**, 4876–4890 (1987).
 - [261] J. R. DORFMAN and E. G. D. COHEN. *Velocity Correlation Functions in Two and Three Dimensions*. Phys. Rev. Lett. **25**, 1257–1260 (1970).
 - [262] M. H. ERNST, E. H. HAUGE and J. M. J. VAN LEEUWEN. *Asymptotic Time Behavior of Correlation Functions*. Phys. Rev. Lett. **25**, 1254–1256 (1970).
 - [263] A. E. BAILEY, W. C. K. POON, R. J. CHRISTIANSON, A. B. SCHOFIELD, U. GASSER, V. PRASAD, S. MANLEY, P. N. SEGRE, L. CIPELLETTI, W. V. MEYER, M. P. DOHERTY, S. SANKARAN, A. L. JANKOVSKY, W. L. SHILEY, J. P. BOWEN, J. C. EGGERS, C. KURTA, T. LORIK, JR., P. N. PUSEY and D. A. WEITZ. *Spinodal decomposition in a model colloid-polymer mixture in microgravity*. Phys. Rev. Lett. **99**, 205701 (2007).
 - [264] A. V. IVLEV, S. K. ZHDANOV, H. M. THOMAS and G. E. MORFILL. *Fluid phase separation in binary complex plasmas*. Europhys. Lett. **85**, 45001 (2009).
 - [265] A. LAUERER, T. BINDER, C. CHMELIK, E. MIERSEMANN, J. HAASE, D. M. RUTHVEN and J. KÄRGER. *Uphill diffusion and overshooting in the adsorption of binary mixtures in nanoporous solids*. Nature Comm. **6**, 7697 (2015).
 - [266] Y. LIU and L. Y. CHEW. *Particles separation in anisotropically confined two-dimensional multi-species systems*. J. Phys.: Condens. Matter **19**, 356213 (2007).
 - [267] A. HOMANN, A. MELZER, S. PETERS and A. PIEL. *Determination of the dust screening length by laser-excited lattice waves*. Phys. Rev. E **56**, 7138–7141 (1997).
 - [268] V. NOSENKO, J. GOREE, Z. W. MA, D. H. E. DUBIN and A. PIEL. *Compressional and shear wakes in a two-dimensional dusty plasma crystal*. Phys. Rev. E **68**, 056409 (2003).
 - [269] J. CARSTENSEN, F. GREINER and A. PIEL. *Determination of dust grain charge and screening lengths in the plasma sheath by means of a controlled cluster rotation*. Phys. Plasmas **17**, 083703 (2010).
 - [270] R. MUKHERJEE, S. JAISWAL, M. K. SHUKLA, A. HAKIM and E. THOMAS. *Measurement of temperature of a dusty plasma from its configuration*. Contrib. Plasma Phys. **60**, e201900161 (2020).
 - [271] C. SCHMIDT and A. PIEL. *Stochastic heating of a single Brownian particle by charge fluctuations in a radio-frequency produced plasma sheath*. Phys. Rev. E **92**, 043106 (2015).
 - [272] C. DURNIK, D. SAMSONOV, N. P. OXTOPY, J. F. RALPH and S. ZHDANOV. *Molecular-Dynamics Simulations of Dynamic Phenomena in Complex Plasmas*. IEEE Trans. Plasma Sci. **38**, 2412–2417 (2010).

- [273] V. NOSENKO, A. V. IVLEV and G. E. MORFILL. *Laser-induced rocket force on a microparticle in a complex (dusty) plasma*. Phys. Plasmas **17**, 123705 (2010).
- [274] F. WIEBEN, J. SCHABLINSKI and D. BLOCK. *Modification of microparticles due to intense laser manipulation*. Phys. Plasmas **26**, 033701 (2019).
- [275] C.-R. DU, V. NOSENKO, H. M. THOMAS, A. MÜLLER, A. M. LIPAEV, V. I. MOLOTKOV, V. E. FORTOV and A. V. IVLEV. *Photophoretic force on microparticles in complex plasmas*. New J. Phys. **19**, 073015 (2017).
- [276] F. WIEBEN and D. BLOCK. *Photophoretic force measurement on microparticles in binary complex plasmas*. Phys. Plasmas **25**, 123705 (2018).
- [277] O. KRAUSS and G. WURM. *Photophoresis and the Pile-up of Dust in Young Circumstellar Disks*. Astrophys. J. **630**, 1088 (2005).
- [278] M. W. CHASE. *NIST-JANAF Thermochemical Tables* (1–1951, 4th Edition, 1998).
- [279] F. KREITH. *The CRC Handbook of Thermal Engineering*, (Boca Raton: CRC Press LLC, 2. Auflage, 2000).
- [280] F. CARDARELLI. *Materials Handbook*, (Springer-Verlag London, 2. Auflage, 2008).
- [281] J. VAN EYMEREN and G. WURM. *The implications of particle rotation on the effect of photophoresis*. Mon. Not. R. Astron. Soc. **420**, 183–186 (2012).
- [282] K. AVINASH. *Thermodynamic processes in dusty plasma*. J. Plasma Phys. **86**, 905860521 (2020).
- [283] O. S. VAULINA, S. A. KHRAPAK, A. P. NEFEDOV and O. F. PETROV. *Charge-fluctuation-induced heating of dust particles in a plasma*. Phys. Rev. E **60**, 5959–5964 (1999).
- [284] C. SCHMIDT and A. PIEL. *Experimental study of the stochastic heating of a single Brownian particle by charge fluctuations*. Phys. Plasmas **23**, 083704 (2016).
- [285] G. E. NORMAN and A. V. TIMOFEEV. *Kinetic temperature of dust particle motion in gas-discharge plasma*. Phys. Rev. E **84**, 056401 (2011).
- [286] D. HALLIDAY, R. RESNICK and J. WALKER. *Physik*, (Wiley VCH, 2001).
- [287] W. DEMTRÖDER. *Experimentalphysik 1: Mechanik und Wärme*, (Springer Spektrum, 7. Auflage, 2015).
- [288] W. NOLTING. *Grundkurs Theoretische Physik 6: Statistische Physik*, (Springer Spektrum, 7. Auflage, 2014).
- [289] F. WIEBEN and D. BLOCK. *Entropy Measurement in Strongly Coupled Complex Plasmas*. Phys. Rev. Lett. **123**, 225001 (2019).
- [290] R. NEWBURGH. *Carnot to Clausius: caloric to entropy*. Eur. J. Phys. **30**, 713–728 (2009).
- [291] S. DEUTSCHLÄNDER, A. M. PUERTAS, G. MARET and P. KEIM. *Specific heat in two-dimensional melting*. Phys. Rev. Lett. **113**, 127801 (2014).

-
- [292] O. S. VAULINA and X. G. KOSS (ADAMOVICH). *Thermodynamic properties of two-dimensional Yukawa systems*. Phys. Lett. A **373**, 3330–3335 (2009).
 - [293] T. FLIESSBACH. *Statistische Physik*, (Spektrum Verlag, 5. Auflage, 2010).
 - [294] H. TOUCHETTE. *Ensemble equivalence for general many-body systems*. EPL (Europhysics Letters) **96**, 50010 (2011).
 - [295] W. DEMTRÖDER. *Experimentalphysik 3: Atome, Moleküle und Festkörper*, (Springer Spektrum, 5. Auflage, 2001).
 - [296] J. DUNKEL and S. HILBERT. *Consistent thermostatistics forbids negative absolute temperatures*. Nat. Phys. **10**, 67–72 (2013).
 - [297] R. H. SWENDSEN and J.-S. WANG. *Gibbs volume entropy is incorrect*. Phys. Rev. E **92**, 020103(R) (2015).
 - [298] P. BUONSANTE, R. FRANZOSI and A. SMERZI. *On the dispute between Boltzmann and Gibbs entropy*. Ann. Phys. **375**, 414–434 (2016).
 - [299] C. B. BARBER. *Qhull Code Dokumentation*. Online verfügbar unter <http://www.qhull.org> (1995-2020).
 - [300] V. A. SCHWEIGERT, I. V. SCHWEIGERT, A. MELZER, A. HOMANN and A. PIEL. *Plasma crystal melting: A nonequilibrium phase transition*. Phys. Rev. Lett. **80**, 5345–5348 (1998).
 - [301] L. COUËDEL, S. K. ZHDANOV, A. V. IVLEV, V. NOSENKO, H. M. THOMAS and G. E. MORFILL. *Wave mode coupling due to plasma wakes in two-dimensional plasma crystals: In-depth view*. Phys. Plasmas **18**, 083707 (2011).
 - [302] A. MELZER, V. A. SCHWEIGERT, I. V. SCHWEIGERT, A. HOMANN, S. PETERS and A. PIEL. *Structure and stability of the plasma crystal*. Phys. Rev. E **54**, 46–49 (1996).
 - [303] L. COUËDEL, V. NOSENKO, A. V. IVLEV, S. K. ZHDANOV, H. M. THOMAS and G. E. MORFILL. *Direct observation of mode-coupling instability in two-dimensional plasma crystals*. Phys. Rev. Lett. **104**, 195001 (2010).
 - [304] G. GOGIA and J. C. BURTON. *Emergent bistability and switching in a nonequilibrium crystal*. Phys. Rev. Lett. **119**, 178004 (2017).
 - [305] V. ILYIN, I. PROCACCIA and A. ZAGORODNY. *Stochastic processes crossing from ballistic to fractional diffusion with memory: Exact results*. Phys. Rev. E **81**, 030105 (2010).
 - [306] C. T. SABIR UMAROV and S. STEINBERG. *On a q-Central Limit Theorem Consistent with Nonextensive Statistical Mechanics*. Milan J. Math. **76**, 307–328 (2008).
 - [307] R. A. QUINN and J. GOREE. *Particle Interaction Measurements in a Coulomb Crystal Using Caged-Particle Motion*. Phys. Rev. Lett. **88**, 195001 (2002).
 - [308] B. LIU, J. GOREE and Y. FENG. *Non-Gaussian statistics and superdiffusion in a driven-dissipative dusty plasma*. Phys. Rev. E **78**, 046403 (2008).

- [309] B. LIU and J. GOREE. *Superdiffusion in two-dimensional Yukawa liquids*. Phys. Rev. E **75**, 016405 (2007).
- [310] E. MILOTTI. *Non-Gaussianity as a data analysis artifact*. Phys. Rev. E **83**, 042103 (2011).
- [311] A. PLASTINO and A. PLASTINO. *Stellar polytropes and Tsallis' entropy*. Phys. Lett. A **174**, 384–386 (1993).
- [312] G. COMBE, V. RICHEFEU, M. STASIAK and A. P. F. ATMAN. *Experimental Validation of a Nonextensive Scaling Law in Confined Granular Media*. Phys. Rev. Lett. **115**, 238301 (2015).
- [313] L. F. BURLAGA, A. F. VINAS, N. F. NESS and M. H. ACUNA. *Tsallis statistics of the magnetic field in the heliosheath*. Astrophys. J. **644**, L83–L86 (2006).
- [314] S. STAVROYIANNIS, I. MAKRIS and V. NIKOLAIDIS. *Non-extensive properties, multifractality, and inefficiency degree of the Athens Stock Exchange General Index*. IRFA **19**, 19–24 (2010).
- [315] C.-K. PENG, J. MIETUS, J. M. HAUSDORFF, S. HAVLIN, H. E. STANLEY and A. L. GOLDBERGER. *Long-range anticorrelations and non-Gaussian behavior of the heartbeat*. Phys. Rev. Lett. **70**, 1343–1346 (1993).
- [316] G. BRYN, M. HUBERT and A. STRUYF. *A Robust Measure of Skewness*. J. Comput. Graph. Stat. **13**, 996–1017 (2004).
- [317] E. DE SANTA HELENA, C. NASCIMENTO and G. GERHARDT. *Alternative way to characterize a q -Gaussian distribution by a robust heavy tail measurement*. Physica A **435**, 44–50 (2015).
- [318] E. N. MIRANDA and D. S. BERTOLDI. *Thermostatistics of small systems: exact results in the microcanonical formalism*. Eur. J. Phys. **34**, 1075–1087 (2013).
- [319] P. DOUGLAS, S. BERGAMINI and F. RENZONI. *Tunable Tsallis Distributions in Dissipative Optical Lattices*. Phys. Rev. Lett. **96**, 110601 (2006).
- [320] G. WILK and Z. WŁODARCZYK. *Interpretation of the Nonextensivity Parameter q in Some Applications of Tsallis Statistics and Lévy Distributions*. Phys. Rev. Lett. **84**, 2770–2773 (2000).
- [321] E. A. MAROUF, G. L. TYLER, H. A. ZEBKER, R. A. SIMPSON and V. R. ESHLEMAN. *Particle Size Distributions in Saturn's Rings from Voyager 1 Radio Occultation*. Icarus **54**, 189–211 (1983).
- [322] H. A. ZEBKER, E. A. MAROUF and G. LEONARD TYLER. *Saturn's rings: Particle size distributions for thin layer models*. Icarus **64**, 531–548 (1985).
- [323] M. KLINDWORTH, A. MELZER, A. PIEL and V. A. SCHWEIGERT. *Laser-excited intershell rotation of finite Coulomb clusters in a dusty plasma*. Phys. Rev. B **61**, 8404–8410 (2000).

Publikationsliste

Teile dieser Arbeit sind in begutachteten wissenschaftlichen Fachzeitschriften veröffentlicht:

1. F. Wieben and D. Block, *Photophoretic force measurement on microparticles in binary complex plasmas*, Phys. Plasmas **25**, 123705 (2018).
2. F. Wieben and D. Block, *Entropy Measurement in Strongly Coupled Complex Plasmas*, Phys. Rev. Lett. **123**, 225001 (2019).

Weitere Veröffentlichungen in wissenschaftlichen Fachzeitschriften:

1. J. Schablinski, F. Wieben and D. Block, *An optical tweezer for complex plasmas*, Phys. Plasmas **22**, 043703 (2015).
2. D. Block, F. Wieben and Jan Schablinski, *Mode Excitation in Finite Dust Clusters Using an Optical Trap*, IEEE Trans. Plasma Sci. **44**, 479–482 (2016).
3. F. Wieben, J. Schablinski and D. Block, *Generation of two-dimensional binary mixtures in complex plasmas*, Phys. Plasmas **24**, 033707 (2017).
4. A. Piel, D. Block, A. Melzer, M. Mulsow, J. Schablinski, A. Schella, F. Wieben and J. Wilms, *Microphysics of liquid complex plasmas in equilibrium and non-equilibrium systems*, Eur. Phys. J. D **72**, 80 (2018).
5. F. Greiner, A. Melzer, B. Tadsen, S. Groth, C. Killer, F. Kirchschrager, F. Wieben, I. Pilch, H. Krüger, D. Block, A. Piel and S. Wolf, *Diagnostics and characterization of nanodust and nanodusty plasmas*, Eur. Phys. J. D **72**, 81 (2018).
6. F. Wieben, J. Schablinski and D. Block, *Modification of microparticles due to intense laser manipulation*, Phys. Plasmas **26**, 033701 (2019).
7. N. Kohlmann, F. Wieben, O. Asnaz, D. Block and F. Greiner, *High-precision in-situ size measurements of single microparticles in an RF plasma*, Phys. Plasmas **26**, 053701 (2019).

Symbolverzeichnis

Lateinische Symbole

Symbol	Bedeutung	Einheit
a	Realteil der komplexen Schwingungsamplitude	m
a_d	Staubpartikelradius	m
a_j	Streukoeffizient	
A	Schwingungsamplitude	m
b	Imaginärteil der komplexen Schwingungsamplitude	m
b_j	Streukoeffizient	
b_{WS}	WIGNER-SEITZ-Radius	m
B	Ergiebigkeit	
c_0	Lichtgeschwindigkeit (im Vakuum)	m/s
c_m	Spezifische Wärme des Partikelmaterials	J/(kg K)
c_j	Streukoeffizient	
C	Wärmekapazität	J/K
d	Dimensionalität	
d_j	Streukoeffizient	
e	EULERSche Zahl	
e_0	Elementarladung	C
E, \mathbf{E}	Elektrische Feldstärke	V/m
E_z	Elektrisches Feld in der Randschicht	V/m
f	Frequenz	Hz
f_{rf}	Entladungsfrequenz	Hz
f_{scan}	Rasterfrequenz der Galvanometerspiegel	Hz
f	Anzahl der Freiheitsgrade	
f_n	normalisierte Kraft	N/kg
F	Freie Energie	J
F	Kraft	N
F^c	Rückstellkraft des Einschlusspotentials	N
F^{drag}	Reibungskraft	N

Symbol	Bedeutung	Einheit
F^{ext}	Externe Kraft	N
F^{E}	Elektrische Feldkraft	N
F^{fluct}	Fluktuierende Kraft	N
F^{G}	Gewichtskraft	N
F^{ion}	Ionenwindkraft	N
F^{int}	Kraft durch elektrostatische Wechselwirkung	N
F^{L}	Laserkraft	N
F^{ph}	Photophoretische Kraft	N
F^{rad}	Kraft durch den Strahlungsdruck	N
F^{th}	Thermophoretische Kraft	N
g, \mathbf{g}	Gravitationsbeschleunigung	m/s ²
$g(r)$	Paarverteilungsfunktion	
$g_{\alpha}(r)$	Radiale Verteilungsfunktion	
G	Amplitudenfaktor	m
h	PLANCKsches Wirkungsquantum	J s
$h(p)$	Wärmetransportkoeffizient	J/(m ² s)
$H(\omega)$	Übertragungsfunktion	
\mathcal{H}	HAMILTON-Funktion	J
i	Imaginäre Einheit	
I	Intensität	W/m ²
$I_{\text{e,i}}$	Elektronen- oder Ionenstrom	A
J_1	Asymmetriefaktor	
J_j	BESSEL-Funktion	
k	Fallensteifigkeit	kg/s ²
$k_{\text{d,n}}$	Wärmeleitfähigkeit der Partikel (d) oder des Gases (n)	W/(m K)
k_{B}	BOLTZMANN-Konstante	J/K
K	Kinetische Energie	J
Kn	Knudsenzahl	
l	Charakteristische Länge	m
l_{mfp}	Mittlere freie Weglänge	m
m	Komplexer Brechungsindex	
$m_{\text{d,e,i,n}}$	Staub-, Elektronen-, Ionen-, Neutralatommasse	kg
n	Realteil des Brechungsindex	
$n_{\text{d,e,i,n}}$	Staub-, Elektronen-, Ionen-, Neutralatomanzahldichte	m ⁻³
N	Teilchenzahl	
p	Druck	Pa
p	Wahrscheinlichkeit	
p_{rad}	Strahlungsdruck	Pa

Symbol	Bedeutung	Einheit
p_x, p_y, \mathbf{p}	Impuls	kg m/s
P	Leistung	W
P_{rf}	Leistung der Hochfrequenzspannungsquelle	W
P_j	LEGENDRE-Polynom	
q_{abs}	Normierter Absorptionsquerschnitt	
q_{ext}	Normierter Extinktionsquerschnitt	
q_{pr}	Normierter Strahlungsdruckquerschnitt	
q_{sca}	Normierter Streuquerschnitt	
q	Nichtextensivität	
\mathbf{q}	Generalisierte Koordinate	m
Q	Elektrische Ladung	C
δQ	Wärmeübertrag	J
Q_{d}	Staubladung	C
r, \mathbf{r}	Abstand, Ortsvektor	m
R	Kräfteverhältnis	
R	Residuum	
R_{c}	Radius der sphärischen Elektrodenmulde	m
s	Gasfluss	scm
S	Entropie	J/K
t	Zeit	s
T	Temperatur	K
$T_{\text{e,i,n}}$	Elektronen-, Ionen- und Neutralatomtemperatur	K
T_{conf}	Konfigurationstemperatur	K
T_{kin}	Kinetische Temperatur	K
U	Potentielle Energie	J
U_{SS}	Spitze-Spitze-Spannung	V
U_{B}	Biasspannung	V
v	Geschwindigkeit	m/s
v_{drift}	Driftgeschwindigkeit	m/s
\bar{v}_{th}	Mittlere thermische Geschwindigkeit	m/s
V_{Ph}	Phasenraumvolumen	(m ² /s) ^f
x	Größenparameter	
x, y, z	Koordinaten	m
z_0	Levitationsposition der Partikel	m
z_{sh}	Position der Randschichtkante	m
Z	Ladungszahl	
Z	Kanonische Zustandssumme	

Griechische Symbole

Symbol	Bedeutung	Einheit
α	Diffusionsexponent	
α	Winkel	rad
α_{th}	Thermischer Akkomodationskoeffizient	
α_{m}	Impuls Akkomodationskoeffizient	
β	EPSTEIN-Reibungskoeffizient	s^{-1}
γ	Dämpfungsrate	s^{-1}
Γ	Kopplungsparameter	
$\mathbf{\Gamma}$	Phasenraum	
$\delta(r)$	DIRACsche Deltafunktion	
δ	Streuparameter der EPSTEIN-Reibung	
ϵ	Emissionsgrad	
ϵ_0	Dielektrizitätskonstante	F/m
ζ	spezifische Ladung (Ladung zu Masse Verhältnis)	C/kg
η	Mischungsverhältnis	
θ	Polarwinkel	rad
$\langle \cos \theta \rangle$	Asymmetrieparameter	rad
κ	Kopplungsstärke	
λ	Wellenlänge	m
λ_{D}	DEBYE-Länge	m
λ_{s}	Effektive Abschirmlänge	m
ν	Imaginärteil des Brechungsindex	
ξ	Normalverteilte Zufallszahl	
π	Kreiszahl	
ρ	Reflexionsvermögen	
ρ_{c}	Ladungsdichte	C/m^3
ρ_{d}	Massendichte	kg/m^3
σ, σ_v	Standardabweichung	
σ_{SB}	STEFAN-BOLTZMANN-Konstante	$\text{W}/(\text{m}^2 \text{K}^4)$
τ	Zeitkonstante	s
ϕ	Phase, Azimuthwinkel	rad
Φ	(Elektrostatistisches) Potential	(V) J/kg
Φ_{fl}	Floatingpotential	V
ψ	RICCATI-BESSEL-Funktion	
ω	Kreisfrequenz	s^{-1}
ω_0	Eigenfrequenz	s^{-1}
$\omega_{\text{p,d}}, \omega_{\text{p,e}}, \omega_{\text{p,i}}$	Staub-, Elektronen-, Ionenplasmafrequenz	s^{-1}

Symbol	Bedeutung	Einheit
$\omega_{0x,0y,0z}$	Einschlussstärke	s^{-1}
Ω	Mikrokanonische Zustandssumme	

Danksagung

Diese Promotion konnte nur gelingen, weil mich viele Menschen auf diesem Weg unterstützt und begleitet haben. Diesen gebührt mein Dank. Zunächst möchte ich meinem wissenschaftlichen Betreuer Prof. Dr. Dietmar Block für die exzellente Betreuung danken. Ich hatte jederzeit das Gefühl Unterstützung einfordern zu können, aber auch den Freiraum links und rechts von dem vorgegebenen Pfad nach den Blumen am Wegesrand zu suchen und diese auch pflücken zu können. Prof. Dr. Piel und Prof. Dr. Benedikt möchte jeweils für die herzliche Aufnahme in die Arbeitsgruppen Plasmadynamik und Experimentelle Plasmaphysik danken. Der Deutschen Forschungsgemeinschaft DFG danke ich für die finanzielle Unterstützung im Projekt A3b des Sonderforschungsbereichs TransRegio24 Kiel-Greifswald sowie im Projekt BL555/3-1.

Ganz herzlich möchte ich mich bei meinen ehemaligen und aktuellen Ko-Doktorand(inn)en Prof. Dr. Judith Golda, Dr. Jasmin Andersen, Dr. Sebastian Groth, Dr. Hendrik Jung, Dr. Benjamin Tadsen, Dr. Jochen Wilms, Oguz Han Asnaz, Maren Dworschak, Christian Schulze, Kerstin Sgonina, Tristan Winzer und Sören Wohlfahrt für die schöne Zeit bedanken. Der wahre Kern der Promotion ist nicht die Jagd nach dem Dokortitel, sondern es sind die Freunde, die wir in dieser Zeit kennenlernen dürfen.

Besonders herausgestellt seien die Menschen, die ein Büro und Labor mit mir geteilt haben. Das sind namentlich Niklas Kohlmann und Sören Wohlfahrt. Vielen Dank für die amüsanten Gespräche und die Akzeptanz meines breiten Musikgeschmacks. Dr. Jan Schablinski danke ich noch für die exzellente Betreuung in meiner Bachelor- und Masterarbeit. Das mir gegenüber erbrachte Vertrauen, das Amt des CANDYMAN der Arbeitsgruppe fortführen zu können, schätze ich ebenfalls sehr. Für die gute Zuarbeit im Labor im Rahmen eines Forschungspraktikums und einer Bachelorarbeit bin ich insbesondere Lasse Bruhn und Kelvin Lamp zu Dank verpflichtet.

An dieser Stelle möchte auch den Leuten danken, die Teile dieser Arbeit auf Rechtschreibfehler und grobe Flüchtigkeitsfehler überprüft haben. Ich danke den Korrekturleser*innen Judith Golda, Kerstin Sgonina, Oguz Han Asnaz, Sebastian Groth und Sören Wohlfahrt.

Dem stets alles kritisch hinterfragenden Dr. Franko Greiner danke ich genau für diese Eigenschaft, die am Ende oft einen neuen Blickwinkel auf offene Problemstellungen geliefert hat. Des Weiteren danke ich ihm für die Vermittlung zahlreicher HiWi-Stellen, die dutzende wichtige Erfahrungen beinhalteten und für Brot auf dem Tisch gesorgt haben.

Der technischen Abteilung bestehend aus Frank Brach, Mario Knüppel, Michael Poser und Volker Rohwer kann ich nur meinen allergrößten Dank und ein Riesenlob für die stets hilfreichen Gespräche und tadellosen Konstruktionen sowie Apparaturen aussprechen. Linda Sommer und

Stefanie Thiedemann danke ich für die Unterstützung in allen Verwaltungsangelegenheiten. Ich danke Frank Hohmann aus der Fachbibliothek für die stets rasche Beschaffung von wissenschaftlicher Literatur.

Meinen Mitmusiker*innen Carolin Diekmann, Torben Dankwort, Sebastian Groth sowie Marcel Kleps danke ich für die wohlverdiente, hochqualitative und so dringend benötigte musikalische Ablenkung neben der Promotion.

Abschließend möchte ich mich bei meinen Eltern Irene und Manfred Wieben für die jahrelange Unterstützung und den immerwährenden Rückhalt bedanken.

Gracias!

Eidesstattliche Erklärung

Ich versichere hiermit an Eides statt, dass die vorliegende Dissertation - abgesehen von der Beratung durch meinen wissenschaftlichen Betreuer und der Verwendung der angegebenen Hilfsmittel - nach Inhalt und Form meine eigene ist. Sie hat weder ganz noch teilweise an einer anderen Stelle im Rahmen eines Prüfungsverfahrens vorgelegen. Diese Arbeit ist unter Einhaltung der Regeln guter wissenschaftlicher Praxis der Deutschen Forschungsgemeinschaft entstanden. Es wurde mir kein akademischer Grad entzogen.

Kiel, den 16.12.2020